

SÉRIE A, N° 4037

N° D'ORDRE :

4888

THÈSES

PRÉSENTÉES

A LA FACULTÉ DES SCIENCES
DE L'UNIVERSITÉ DE PARIS

POUR OBTENIR

LE GRADE DE DOCTEUR ES SCIENCES PHYSIQUES

PAR

Lucien GODEFROY

1^{re} THÈSE. — PHOTOMÉTRIE DIFFÉRENTIELLE DES RAYONS X.
APPLICATION A LA MAGNÉTOSTRICITION DU FER-
RITE DE COBALT.

2^e THÈSE. — (Propositions données par la Faculté).
AMPLIFICATION ULTRASONIQUE DANS LES SEMI-
CONDUCTEURS.

Soutenues le 27 Avril 1963 devant la Commission d'examen

MM. GUINIER *Président.*

AIGRAIN	}	<i>Examineurs.</i>
OLMER		
CURIEN		

SÉRIE A, N° 4037

N° D'ORDRE :

4888

THÈSES

PRÉSENTÉES

A LA FACULTÉ DES SCIENCES
DE L'UNIVERSITÉ DE PARIS

POUR OBTENIR

LE GRADE DE DOCTEUR ES SCIENCES PHYSIQUES

PAR

Lucien GODEFROY

1^{re} THÈSE. — PHOTOMÉTRIE DIFFÉRENTIELLE DES RAYONS X.
APPLICATION A LA MAGNÉTOSTRICITION DU FER-
RITE DE COBALT.

2^e THÈSE. — (Propositions données par la Faculté).
AMPLIFICATION ULTRASONIQUE DANS LES SEMI-
CONDUCTEURS.

Soutenues le 27 Avril 1963 devant la Commission d'examen

MM. GUINIER *Président.*

AIGRAIN	}	<i>Examineurs.</i>
OLMER		
CURIEN		





Digitized by the Internet Archive
in 2026

https://archive.org/details/IA41548803_0066

Faculté des Sciences de l'Université de Paris

Doyen H. ZAMANSKY

PROFESSEURS

G. JULIA	T	Analyse supérieure et Algèbre supérieure.	WIEMANN	T	Chimie organique et struc.
DE BROGLIE	T	Théories physiques.	JACQUINOT	T	Spectroscopie et physique céleste (Orsay).
PRENANT	T	Anatomie et Histologie comparées.	VASSY	T	Physique de l'atmosphère.
GRASSÉ	T	Evolution des êtres organisés.	DESTOUCHES	T	Théories physiques.
PRÉVOST	T	Chimie organique.	AMIEL	T	Chimie générale.
CHAUDRON	T	Chimie appliquée.	HOCART	T	Minéralogie et Cristallog.
WYART	T	Minéralogie et Cristal.	J.-P. MATHIEU	T	Physique (Optique).
TEISSIER	T	Zoologie.	COUTEAUX	T	Biologie animale (P.C.B.).
MANGENOT	T	Biologie vég. (Orsay).	MAY	T	Zoologie (Orsay).
P. AUGER	T	Physique quantique et Relativité.	CHOQUET	T	Théorie des fonctions et Topologie.
MONNIER	T	Physiologie générale.	FELDMANN	T	Biologie végétale marine.
PIVETEAU	T	Paléontologie.	GUINIER	T	Physique des solides (Orsay).
ROCARD	T	Physique (E. N. S.).	JOST	T	Physiologie comparée.
H. CARTAN	T	Mathématiques (E. N. S.).	FORTET	T	Calcul des probabilités et Physique mathématique.
LAFFITTE	T	Chimie générale.	SCHWARTZ	T	Calcul diff. et intégral.
FAVARD	T	Géométrie supérieure.	CHOUARD	T	Physiologie végétale.
COULOMB	T	Physique du Globe.	MALAVARD	T	Aviation (Tech. aéronaut.).
Mlle COUSIN	T	Biologie animale (S.P.C.N.).	BRELOT	T	Calcul diff. et intégral.
CHRÉTIEN	T	Chimie minérale.	NORMANT	T	Synthèse organique générale.
P. DRACH	T	Zoologie.	BÉNARD	T	Chimie minérale.
KASTLER	T	Physique (E. N. S.).	BUYAT	T	Botanique (E. N. S.).
EPHRUSSI	T	Génétique.	DUGUÉ	T	Statistiques mathématiques.
RIVIÈRE	T	Géologie S.P.C.N. et sédim.	SOULAIRAC	T	Psychophysiologie.
GAUTHERET	T	Biologie vég. (P. C. B.).	ULRICH	T	Physiologie végétale.
LUCAS	T	Recherches physiques.	MARÉCHAL	T	Optique théorique et appliquée.
A. THOMAS	T	Biologie cellulaire.	KIRRMANN	T	Théories chimiques.
ARNULF	T	Optique appliquée.	CHADEFAUD	T	Botanique.
M. MORAND	T	Physique enseignement.	Mlle LE BRETON	T	Physiologie de la nutrition.
SOLEILLET	T	Physique (P. C. B.).	SALEM	T	Mathématiques générales.
FORTIER	T	Mécanique expérimentale des fluides.	LELONG	T	Application de l'analyse à la géométrie.
DANJON	T	Astronomie.	DEVILLERS	T	Anatomie et Histologie comparée.
PETIT	T	Biologie maritime.	EHRESMANN	T	Topologie algébrique.
QUENEY	T	Météorologie et dynamique atmosphérique.	FRANÇON	T	Physique (S. P. C. N.).
GALLIEN	T	Embryologie.	GLANGEAUD	T	Géographie phys. et Géologie dynamique.
EICHHORN	T	Botanique.	GODEMENT	T	Mathématiques (M. P. C.).
DE CUGNAC	T	Biologie végétale (SPCN).	PISOT	T	Tech. mathém. de la phys.
Mlle CAUCHOIS	T	Chimie physique.	ROCH E.	T	Géologie.
THELLIER	T	Physique du Globe.	SCHATZMANN	T	Astrophysique.
L'HÉRITIER	T	Biologie générale (Orsay).	TERMIER	T	Paléontologie stratig.
GRIVET	T	Radioélectricité (Orsay).	ZAMANSKY	T	Mathématiques générales.
PONCIN	T	Mécanique générale.	LENNUIER	T	Physique (M. G. P.).
DUBREIL	T	Arithmétique et théorie des nombres.	RIZET	T	Génétique (Orsay).
QUELET	T	Chimie organique.	ROUTHIER	T	Géologie appliquée.
CAGNIARD	T	Géophysique appliquée.	Mme TONNELAT	T	Physique théorique.
CHAMPETIER	T	Chimie macromoléculaire.	DIXMIER	T	Mathématiques (M. P. C.).
CUVILLIER	T	Micropaléontologie.	SOUCHAY	T	Chimie générale.
JUNG	T	Pétrographie.	AIGRAIN	T	Electrotechnique générale.
TRILLAT	T	Microscopie et diffraction électronique.	BRUSSET	T	Chimie systématique.

PROFESSEURS (Suite)

M. LÉVY	T	Physique théorique des hautes énergies (Orsay).	DE POSSEL	T	Analyse numérique.
Mme CHAIX	T	Chimie biologique.	CHARLOT	T	Chimie analytique.
Mme HUREL-PY	T	Biologie végétale (P.C.B.).	HAISSINSKY	T	Radiochimie.
PIAUX	T	Chimie (M. P. C.).	LEMÉE	T	Physiol. vég. B.M.P.V. (Orsay).
BRUN	T	Mécanique théorique des fluides.	GUÉRIN	T	Chimie M. P. C. (Orsay).
LEDERER	T	Chimie biologique.	CHATELET M	T	Chimie (P. C. B.).
Mme DUBREIL	T	Mathém. (agrégation).	JEAN	T	Phys. nucléaire (Orsay).
Mme LELONG	T	Mathématiques (E. N. S.).	MATTIER	T	Physique (S. P. C. N.).
BELLAI	T	Géologie (S. P. C. N.).	MICHEL L.	T	Phys. théor. des hautes énergies (Orsay).
COTTE	T	Physique électricité.	BERGERARD	T	Zoologie (Orsay).
DUBOIS J. E.	T	Chimie organique.	BERTEIN	T	Electronique (Orsay).
LAMOTTE	T	Zoologie (E. N. S.).	BOUSSIÈRES	T	Chimie des radioéléments (Orsay).
MICHEL André	T	Chimie minérale (Orsay).	Mme COUTURE	T	Thermodynamie et mécanique physique.
OLMER	T	Energetique générale.	ELLENBERGER	T	Géologie appli. s/ le terr.
ROUAULT	T	Electricité (Orsay).	FRANC	T	Biol. animale (P. C. B.).
GAUTHIER	T	Mécanique appliquée.	SCHNELL	T	Botanique trop. (Orsay).
BARCHIEWITZ	T	Chimie physique.	STOLKOWSKI	T	Physiologie générale.
BROSSEL	T	Physique atomique.	ACHER	T	Chimie biol. (Orsay).
BUSER	T	Physiologie comparée.	BAUDOIN	T	Biologie animale (P.C.B.).
CAMUS	T	Physiologie vég. (B.M.P.V.).	BEAUMONT	T	Biologie anim. (S.P.C.N.).
CASTAING	T	Physique (Orsay).	BLAMONT	T	Géophysique ionosphère.
CURIEN	T	Minéralogie et Cristallog.	BOURREAU	T	Botanique.
MOYSE	T	Physiologie végé. (Orsay).	CURIE D.	T	Physique (M. G. P.).
NOIROT	T	Evolution des Etres org.	DURAND-DELGA	T	Géologie.
PANNETIER	T	Chimie générale (Orsay).	FREON	T	Chimie organique (Orsay).
POSSOMPES	T	Zoologie.	HELLER	T	Physiologie végétale.
PULLMANN	T	Chimie théorique.	TORTRAT	T	Calcul des probabilités.
TEILLAC	T	Physique nucl. et Radio-activités.	CAILLEUX	T	Géologie (S. P. C. N.).
TONNELAT	T	Biologie physico-chim.	MAGNAN	T	Physique (S. P. C. N.).
VILLE	T	Econometrie.	DAUDEL	T	Mécanique ondulatoire ap pl. à la Chim. théor. et à la Phys. nucléaire.
WILLEMART	T	Chimie (P. C. B.).	Mlle FOURCROY	T	Biol. végétale (S.P.C.N.).
DODÉ	T	Chimie (Orsay).	Mme CHOQUET	T	Méc. analytique et Méc. céleste.
FREYMAN	T	Recherches physiques.	BRUHAT	T	Physiologie générale.
GUINOCHET	T	Biol. vég. S.P.C.N. (Orsay).	Mlle VEIL	T	Microbiologie.
ROLLET	T	Chimie (P.C.B.).	LWOFF	T	Mécan. phys. et expérim.
Mlle JOSIEN	T	Chimie (S. P. C. N.).	SIESTRUNCK	T	Métallur. des métaux nucl.
CHEVALLEY	T	Géométrie algébrique et théorie des groupes.	BROCHARD	T	Physique P. C. B. (Orsay).
ARNOULT	T	Electronique (Orsay).	CABANNES	T	Mécanique générale.
CHAPELLE	T	Physique (Orsay).	LESIEUR	T	Mathématiques M. P. C. (Orsay).
DELANGE	T	Mathématiques (Orsay).	MAZET	T	Mécanique génér. (Orsay).
DENY	T	Mathématiques générales (Orsay).	CAIRE	T	Géographie phys. et Géol. dynamique.
GERMAIN	T	Mécan. théor. des fluides.	COMOLET	T	Mécanique des fluides.
LUCAS G.	T	Géologie.	CORABŒUF	T	Physiologie animale.
ALLARD	T	Chimie physique.	DELLOUE	T	Physique de l'exosphère.
BERTHELOT	T	Phys. fondamentales des hautes énergies (Orsay).	GORENGLOT	T	Botanique II (Orsay).
BRICART	T	Météorologie et phys. de l'atmosphère.	HOUILLO	T	Biologie animale (P.C.B.).
Mme ALBE-FESSARD	T	Psychophysiologie.	JULIEN J.	T	Chimie (P. C. B.).
FRIEDEL	T	Physique des solides (Orsay).	MALGRANGE	T	Tech. math. de la Phys.
M. JULIA	T	Etudes des Moléculaires naturelles complexes.	OLIVIER	T	Antropologie.
LENDER	T	Biol. animale S.P.C.N. (Orsay).	NOZERAN	T	Botanique II (Orsay).
MAGAT	T	Physico-chimie des radio-éléments.	BLANC - LAPIERRE	T	Physique ens. (Orsay).
Mlle QUINTIN	T	Electrochimie.	CHEVAUGEON	T	Botanique (Orsay).
MONOD	T	Chimie du métabolisme.	KAHANE	T	Mathématiques (Orsay).
BENOIT	T	Physiol. anim. (Orsay).	SAMUEL	T	Math. ens. féminines.
			KOURGANOFF	T	Astronomie (Orsay).
			THIRY	T	Mécanique céleste.

Secrétaire général R. POULLAIN

Ce travail a été entrepris à l'instigation de M. P. Aigrain. Nous tenons à lui exprimer ici nos remerciements les plus chaleureux pour les conseils judicieux et les encouragements amicaux qu'il n'a cessé de nous prodiguer.

M. A. Guinier a accepté de suivre le développement de notre travail et lui a constamment apporté l'appui de sa haute compétence. Qu'il veuille bien trouver ici l'expression de nos plus sincères sentiments de reconnaissance.

M. Y. Rocard, Directeur du Laboratoire de Physique de l'Ecole Normale Supérieure, et M. P. Olmer, Directeur du Laboratoire Central des Industries Electriques, nous ont accueilli successivement dans leurs établissements. Nous tenons à les en remercier bien vivement.

Qu'il nous soit permis de remercier aussi :

M. Curien pour les conseils éclairés qu'il a bien voulu nous fournir pendant la première partie de notre travail.

Mme Godefroy et M. Tavernier pour leurs remarques pertinentes et leur appui constant.

M. Antoine dont l'aide dévouée nous a permis de surmonter de nombreuses difficultés.

M. Nicolas, de la Compagnie Générale de Télégraphie sans Fil, qui s'est chargé de la préparation des céramiques de ferrite.

Tous nos collègues du Laboratoire Central des Industries Electriques dont l'amitié n'a cessé de créer l'atmosphère de camaraderie la plus propice à l'avancement de notre travail.

PREMIÈRE PARTIE

INTRODUCTION

Dès les premières années qui ont suivi leur découverte les rayons X se sont révélés être un outil remarquable pour l'étude de la structure microscopique des corps (L 13). Leur longueur d'onde est en effet d'un ordre de grandeur comparable à celui des distances interatomiques et la propagation d'une onde X dans un milieu matériel s'accompagne de phénomènes de diffraction capables de fournir des renseignements sur la disposition des atomes (B.B. 13).

Dans le cas d'un corps solide par exemple la diffusion cohérente des rayons X par les électrons des carcasses ioniques a permis de vérifier les hypothèses sur la structure périodique et de mesurer les paramètres cristallins (B 14). Les généralisations successives de cette expérience initiale ont conduit aux méthodes de spectrométrie aujourd'hui classiques.

A côté des expériences fondamentales de détermination des structures cristallines (G 57) un grand nombre d'autres méthodes ont été proposées pour étudier, par exemple, les défauts et les dislocations dans les cristaux (B 57), les contraintes mécaniques dans les pièces fabriquées (B 52, G 49), la composition et les transformations ordre-désordre dans les alliages (R 56, C 50,1) les relations d'ordre à grande distance dans les liquides (F 57), etc.

Ces méthodes ont toutes un caractère commun, celui d'être statiques : elles étudient dans son ensemble l'état d'un corps qui ne subit aucune modification au cours du temps.

On peut imaginer un autre mode d'investigation : celui qui consiste à étudier la modification apportée à l'état d'un échan-

tillon par l'action d'un paramètre extérieur. On espère ainsi pouvoir isoler dans l'ensemble complexe que constitue la structure l'influence spécifique de tel ou tel paramètre. C'est cette technique qui constitue la « spectrométrie différentielle ». Sa mise en œuvre exige deux mesures indépendantes effectuées pour deux valeurs différentes du paramètre extérieur. La comparaison de leurs résultats doit fournir le résultat cherché.

La nature du paramètre dont on peut étudier l'influence est extrêmement variée : ce peut être une contrainte mécanique : compression, flexion, torsion, un champ électrique ou magnétique, une irradiation quelconque : photons, particules α , neutrons, etc. Par la suite, par extension de l'exemple traité, ce paramètre extérieur sera désigné sous le nom de « champ » ou « champ appliqué » sans que cela ne préjuge en rien de sa nature.

Il sera d'ailleurs évident par la suite que cette notion doit être considérablement étendue et qu'il n'y a aucune raison de limiter l'action du paramètre extérieur au cristal diffractant mais que l'on peut l'étendre soit à la source, soit au détecteur de rayons X.

En se limitant pour l'instant à une expérience classique dans laquelle on étudie le spectre de diffraction d'un monocristal ou d'une poudre cristalline, et dans laquelle on ne modifie, par l'action du champ extérieur, que la structure cristalline, on constate que les effets de cette modification ne peuvent être que de trois ordres. S'il y a modification des paramètres cristallins, par exemple passage d'une structure cubique à une structure quadratique, il y a déplacement des raies de diffraction, les angles de Bragg θ subissent une variation $\Delta\theta$. S'il y a en outre modification du motif cristallin par déplacement relatif des atomes qui le composent, le facteur de structure est modifié et l'intensité globale I diffractée dans une raie déterminée subit une variation ΔI . Enfin, si les contraintes locales sont sensibles au champ appliqué il peut en résulter une modification des phénomènes d'extinction d'où une variation d'intensité diffractée et une modification de la forme de la raie de diffraction.

Dans la mesure où l'angle $\Delta\theta$ est petit on verra que sa mise en évidence se ramène à une mesure de variation relative d'intensité $\Delta I/I$. Il en est de même de l'étude de la modification de la forme de la raie. C'est pourquoi dans la discussion de la méthode de mesure, référence sera faite à des déterminations de variation relative d'intensité $\eta = \Delta I/I$. Ce rapport sera désigné sous le nom d'« effet dû au champ appliqué » ou simplement d'« effet ».

Un exemple d'application traité dans l'annexe I permet de se rendre compte de l'ordre de grandeur des valeurs de η que l'on est en droit d'attendre. Pour que la méthode soit utile il paraît indispensable de pouvoir mesurer des effets de l'ordre de 10^{-2} , c'est-à-dire que si l'on veut une précision de 10 % il faut que la sensibilité de l'appareil permette de déceler des variations relatives d'intensité de 10^{-3} .

Cette sensibilité peut en fait être atteinte et même dépassée dans des cas favorables.

DEUXIÈME PARTIE

LES MÉTHODES

CHAPITRE 2.1

La Méthode classique

§ 2.1.1. Son principe et ses exigences

Pour parvenir au but qui a été défini dans l'introduction, c'est-à-dire pour mesurer la variation d'intensité diffractée produite par la variation du champ extérieur, la méthode la plus simple consiste à effectuer deux expériences successives qui ne diffèrent entre elles que par la présence ou l'absence de champ appliqué. La variation relative des intensités I_1 et I_2 mesurées dans les deux cas fournit le renseignement physique cherché. Soit

$$\eta = \frac{\Delta I}{I} = 2 \frac{I_1 - I_2}{I_1 + I_2}$$

cette variation relative.

Si η est de l'ordre de 1 % et que l'on veuille le déterminer à 10 % près il apparaît que chacun des résultats de mesure I_1 et I_2 doit être connu avec une précision supérieure à $5 \cdot 10^{-4}$. Un calcul d'erreur simple montre en effet que l'on a

$$\frac{d\eta}{\eta} = \left(\frac{2}{\eta} + 1 \right) \frac{dI}{I} \approx \frac{2}{\eta} \frac{dI}{I}$$

où l'on a fait

$$\eta = 0,01 \qquad \frac{d\eta}{\eta} = 0,1$$

La première conséquence que l'on tire de ce résultat est que chaque mesure est certainement longue. En effet, ou bien l'on utilise comme détecteur une plaque photographique et il faut poser le temps nécessaire à son impression, ou bien l'on utilise un détecteur à impulsions (compteur Geiger ou scintillomètre) et il faut compter un nombre d'impulsions suffisant pour éliminer l'erreur systématique due au caractère aléatoire de l'émission des rayons X. Ces problèmes seront discutés plus en détail par la suite. Ils impliquent de toute façon des durées d'expériences qui atteignent facilement plusieurs heures. L'ordre de grandeur d'une heure sera retenu pour la discussion, car il n'est guère possible de réduire cette durée de façon appréciable sans être conduit à augmenter l'intensité des tubes de rayons X utilisés. Sans préjuger des améliorations toujours possibles il sera suffisant par la suite d'utiliser les caractéristiques des sources actuellement d'usage courant.

Une autre conséquence du résultat précédent est qu'il faut maintenir constants tous les paramètres (à l'exclusion du champ appliqué) avec une précision suffisante pour que l'intensité I ne soit pas modifiée de façon prohibitive pendant la durée des deux mesures. En d'autres termes, il est nécessaire d'assurer la stabilité de l'ensemble source, cristal, détecteur avec une bonne précision, savoir $5 \cdot 10^{-4}$ au moins dans l'exemple cité. Pour des raisons qui seront discutées par la suite cette exigence est très difficile à satisfaire.

Le choix des conditions d'expérience est donc le suivant : ou bien essayer de travailler avec une très forte intensité de façon à réduire la durée pendant laquelle on doit assurer la stabilité, ou bien s'efforcer d'augmenter au maximum la stabilité de façon à pouvoir travailler pendant des temps suffisamment longs. En fait l'étude des conditions d'augmentation de l'intensité et de la stabilité va faire apparaître qu'elles sont partiellement contradictoires.

§ 2.1.2. *L'augmentation de l'intensité*

Le problème de l'augmentation de l'intensité des tubes de rayons X est posé depuis fort longtemps. Il est dominé par la difficulté d'évacuer l'énergie dissipée dans l'anticathode de façon à maintenir sa température dans des limites raisonnables.

Le rendement quantique d'une anticathode (rapport du nombre de photons émis au nombre d'électrons incidents) est très faible. La plus grande partie de l'énergie du faisceau élec-

tronique incident se retrouve donc dissipée sous forme de chaleur dans l'anticathode. Pour un tube fonctionnant sous 50 kV avec une intensité de 10 mA, la puissance reçue par l'anticathode est voisine de 500 Watts. Malgré le refroidissement énergétique qu'on lui fait subir on conçoit que la température de sa face utile augmente considérablement pendant le fonctionnement. Pour une anticathode donnée on ne peut donc pas augmenter le débit du tube au-delà d'une certaine limite.

Certaines techniques propres à améliorer cet état de choses ont été proposées, par exemple l'anticathode tournante ou l'anticathode à pastille noyée dans un métal bon conducteur (G 56, p. 58). Elles ne semblent pas apporter des améliorations telles que l'on doive en tenir compte par la suite. Seuls seront donc envisagés les tubes à caractéristiques classiques.

Cette restriction est d'autant moins importante que, même si l'on dispose de tubes à très forte intensité, l'on est souvent contraint pour des raisons physiques à travailler dans des faisceaux diffractés dont l'intensité est très faible parce que le pouvoir réflecteur des plans réticulaires utilisés est très faible. Cette limitation, exigée par la nature même du travail entrepris, ne saurait être levée.

§ 2.1.3. *L'augmentation de la stabilité*

Comme celui de l'augmentation de l'intensité, le problème de l'augmentation de la stabilité est fort ancien (G 57). Des solutions partielles ont été proposées qui donnent plus ou moins satisfaction.

Les causes d'instabilité, ou comme l'on dit, de fluctuations sont extrêmement nombreuses. Elles proviennent de tous les éléments de l'ensemble de cristallométrie. Dans le tube émetteur ce sont la haute tension filament-anticathode et la température du filament qui interviennent principalement. Dans l'installation du goniomètre ce sont les instabilités mécaniques, vibrations ou dilatactions thermiques.

Si l'on utilise une détection par plaque photographique des fluctuations proviennent de la fabrication même des plaques et de la plus ou moins bonne reproductibilité des conditions du développement et de la sensitométrie. Si l'on utilise une détection par compteur à impulsions, la haute tension du compteur et l'ensemble de comptage électronique introduisent les principales causes de fluctuations.

La stabilisation à mieux de $5 \cdot 10^{-4}$ de l'ensemble de ces organes est un problème difficile. Il serait vain d'essayer de stabiliser indépendamment chacun des organes précités. Dans le cas d'une détection par compteur on essaye tout au plus d'utiliser un système de contre-réaction. On prélève à la sortie de l'ensemble de comptage une différence de potentiel proportionnelle à l'intensité diffractée et on la transforme en un signal susceptible d'agir sur l'intensité de la source. Il est alors possible en choisissant un montage correct de faire augmenter l'intensité de la source quand l'intensité diffractée a tendance à diminuer et réciproquement. Ce montage augmente la stabilité, mais pas au-delà de toutes limites. On arrive à obtenir 0,2 % (G 57, p. 26).

Le procédé de contre-réaction est correct pour éliminer les fluctuations qui se produiraient à un rythme rapide, mais il est beaucoup moins efficace pour éliminer les fluctuations qui se produisent sur des périodes longues, celles auxquelles on réserve le nom de « dérives ». Or, pour les applications envisagées il est nécessaire que la stabilité soit assurée pendant plusieurs heures, ceci n'est pas réalisé de façon satisfaisante, même avec des montages à contre-réaction.

§ 2.1.4. Discussion

D'après les paragraphes précédents il apparaît que l'intensité ne peut pas être augmentée de façon appréciable. Il en résulte que la durée des deux expériences consécutives reste telle que la stabilité ne peut être assurée de façon satisfaisante. La situation est d'ailleurs encore plus mauvaise que ne le laisse supposer cette conclusion car les raisonnements précédents sur l'intensité et la stabilité ont été faits indépendamment, or il est bien évident qu'il est d'autant plus difficile d'assurer la stabilité de l'émission de la source que l'on exige d'elle une intensité plus forte.

Les deux exigences de la méthode classique sont donc partiellement contradictoires et l'on peut dire que le « produit »

$$\text{« intensité »} \times \text{« stabilité »}$$

est insuffisant. Il est donc sûr que la méthode qui consiste à comparer les résultats de deux mesures successives faites indépendamment ne permet pas d'atteindre la sensibilité précédemment fixée.

La Méthode de simple modulation

§ 2.2.1. Principe de la méthode

La méthode classique exposée ci-dessus consistait à faire une mesure complète en l'absence de champ puis une autre mesure complète en présence de champ. L'échec provenait de la nécessité d'assurer une stabilité suffisante pendant la durée des deux expériences.

La méthode que nous proposons consiste à faire une mesure fragmentaire de courte durée en l'absence de champ, puis, immédiatement après, une autre mesure fragmentaire en présence de champ. En répétant ces mesures et en accumulant les résultats on obtient deux mesures complètes que l'on peut comparer. La stabilité ne joue plus un rôle critique puisqu'il suffit qu'elle soit maintenue bonne pendant la durée de deux expériences fragmentaires successives.

Pour parvenir à cette fin on utilise un champ appliqué variable dans le temps comme le représente la figure 1. Le cristal reste

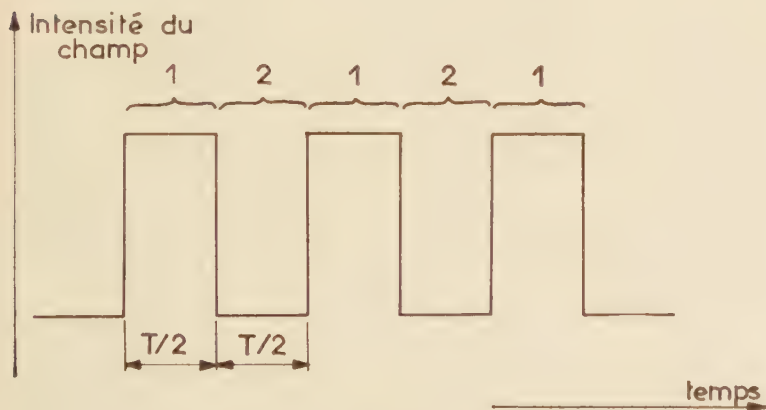


Fig. 1

pendant le temps $\frac{T}{2}$ dans l'état 1 où le champ est fort et le temps $\frac{T}{2}$ dans l'état 2 où le champ est faible.

La valeur de T dépend de l'expérience envisagée, en pratique T sera toujours inférieur à la seconde, et souvent de l'ordre de 10^{-3} s.

Le tube générateur est à émission continue, la détection est faite par un compteur à scintillations. Les impulsions sont acheminées et accumulées sur une voie pendant les états 1, sur une autre voie pendant les états 2. Cette répartition des impulsions est assurée par un dispositif électronique synchronisé sur le champ appliqué.

Il s'agit donc d'un procédé de modulation et démodulation synchrone : la structure du cristal est « modulée » à une certaine fréquence par le champ appliqué, la réponse du détecteur est « démodulée » par un système électronique « synchronisé » sur la modulation. Ceci résout le problème de la stabilité car on sait qu'un tel procédé a l'avantage d'éliminer l'influence

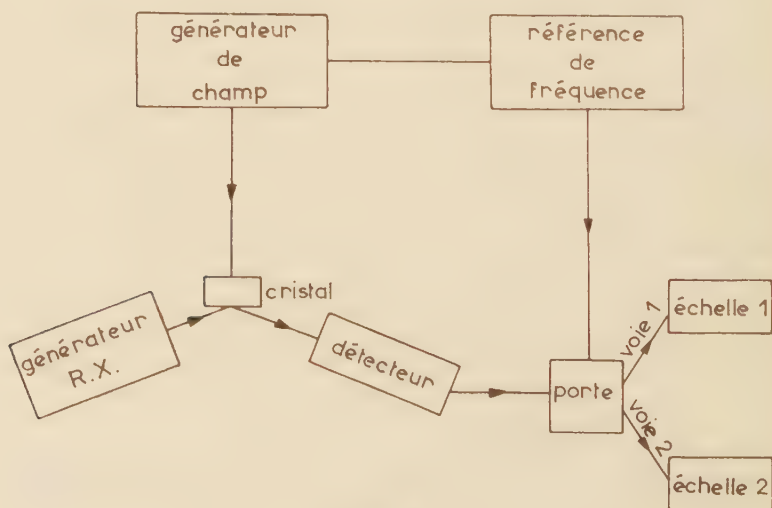


Fig. 2

des fluctuations dont la fréquence est différente de celle de la modulation. En particulier les dérives qui étaient très gênantes dans la méthode classique, correspondent à des périodes très longues et sont sans aucune influence dans la présente méthode. Au contraire, les fluctuations qui se produisent à la fréquence de modulation sont une cause d'erreur qu'il est nécessaire d'éliminer spécialement. Nous en verrons un exemple dans la suite.

§ 2.2.2. *Principe de la réalisation*

Le schéma de connexion des organes essentiels est représenté sur la figure 2. Leur rôle respectif est évident, nous reprendrons l'étude détaillée de leur réalisation et de leurs performances après avoir discuté les causes d'erreur.

§ 2.2.3. *Discussion de la méthode*

Dans ce paragraphe nous passons en revue les différentes causes d'erreur que comporte la méthode et nous cherchons comment les éliminer ou les évaluer.

2.2.3.1. *Le caractère aléatoire de l'émission des rayons X.*

En l'absence de modulation on s'attendrait à ce que les nombres N_1 et N_2 d'impulsions enregistrées sur les deux voies soient tous deux égaux à N . Mais le caractère aléatoire de l'arrivée des impulsions entraîne des fluctuations telles que $|N_1 - N_2|$ soit de l'ordre de $\sqrt{N}$. Plus précisément (cf. annexe 2) après avoir enregistré N impulsions il y a une chance sur deux pour que $|N_1 - N_2| \leq \sqrt{N}$, une chance sur cent pour que $|N_1 - N_2| \geq 3,6 \sqrt{N}$, etc. Il est donc vain d'essayer de détecter une différence relative η entre N_1 et N_2 si η est inférieur à $\frac{\sqrt{N}}{N} = \frac{1}{\sqrt{N}}$. Par exemple

pour que la sensibilité soit $5 \cdot 10^{-4}$ il est nécessaire de compter au moins $(5 \cdot 10^{-4})^{-2} = 4 \cdot 10^6$ impulsions. Nous reviendrons dans la 3^e partie sur les conséquences pratiques de ce phénomène et sur la façon de conduire les mesures pour en tenir compte (fig. 9 et 10).

2.2.3.2. Les imperfections de l'oscillateur local.

L'oscillateur local qui sert de référence de fréquence n'est pas parfait. Il faut tenir compte d'une inégalité entre les durées T_1 et T_2 des deux fractions de la période T et du délai nécessaire pour passer de l'un des états à l'autre.

Soient n_1 et n_2 les nombres moyens d'impulsions que le faisceau diffracté engendre par unité de temps quand le cristal est respectivement dans l'état 1 ou 2. L'« effet » que l'on cherche à mesurer est

$$\eta = 2 \frac{n_1 - n_2}{n_1 + n_2} \quad (\text{II.2.1})$$

Soient N_1 et N_2 les nombres d'impulsions comptées respectivement par les voies 1 et 2 dans le même temps t . L'effet que l'on mesure, ou effet apparent η_a est :

$$\eta_a = 2 \frac{N_1 - N_2}{N_1 + N_2} \quad (\text{II.2.2})$$

Pendant le temps t que l'on suppose grand devant T_1 et T_2 les voies 1 et 2 sont restées ouvertes respectivement pendant les durées

$$\frac{T_1 t}{T_1 + T_2} \quad \text{et} \quad \frac{T_2 t}{T_1 + T_2}$$

on a donc $N_1 = \frac{n_1 T_1}{T_1 + T_2} t$, $N_2 = \frac{n_2 T_2}{T_1 + T_2} t$ d'où

$$\eta_a = 2 \frac{n_1 T_1 - n_2 T_2}{n_1 T_1 + n_2 T_2} \quad (\text{II.2.3.})$$

Si T_1 et T_2 ne sont pas très différents on peut poser $T_2 = T_1 (1 + \xi)$ et développer au premier ordre en ξ :

$$\eta_a \approx \eta \left(1 + \frac{2n_1 n_2}{n_1^2 - n_2^2} \right) = \eta + \left(1 - \frac{\eta^2}{4} \right) \xi$$

c'est-à-dire, si $\eta \ll 1$,

$$\eta_a \approx \eta + \xi \quad (\text{II.2.4})$$

L'écart relatif des durées des créneaux s'ajoute donc à l'effet lui-même (1).

(1) L'inégalité de T_1 et T_2 peut être considérée comme une fluctuation synchrone que la démodulation n'élimine pas.

La mesure ou l'évaluation de ξ ne sont pas faciles car la définition même de T_1 et T_2 suppose que les transitions entre les deux états soient très rapides. En fait il n'en est rien et les transitions sont des périodes pendant lesquelles on ne peut pas être sûr du fonctionnement de l'appareil. Il y a là une cause d'erreur systématique permanente. Nous verrons au paragraphe suivant comment l'inclure dans un ensemble que l'on peut évaluer.

2.2.3.3. *Le bruit de fond.*

En plus du faisceau utile le détecteur reçoit des rayonnements parasites provenant soit de la diffusion des rayons X, soit du rayonnement cosmique. Les premiers peuvent être réduits de façon appréciable en prenant les précautions classiques (K 59), mais ils ne peuvent pas être totalement éliminés. Par contre, il est possible d'éliminer une grande partie du rayonnement cosmique en utilisant un compteur proportionnel. En effet, comme l'énergie de la plupart des rayons cosmiques est différente de celle des rayons X utilisés, le compteur proportionnel délivre des impulsions dont l'amplitude dépend de l'origine. En plaçant à sa sortie un sélecteur d'amplitude il est possible de ne laisser passer que les impulsions provenant des rayons X.

Evaluons l'erreur qui résulte de la partie du bruit de fond que l'on ne peut éliminer. Soit n le nombre moyen d'impulsions que le bruit de fond provoque par unité de temps. Les nombres n_1 et n_2 du paragraphe 2.2.3.2. doivent être remplacés par

$$n_1' = n_1 + n \quad \text{et} \quad n_2' = n_2 + n$$

En supposant pour faire le calcul correctif que $T_1 = T_2$ on a

$$N_1 = n_1' \frac{t}{2}, \quad N_2 = n_2' \frac{t}{2}$$

d'où

$$\eta_a = 2 \frac{n_1' - n_2'}{n_1' + n_2'} = 2 \frac{n_1 - n_2}{n_1 + n_2 + 2n} = \eta \frac{1}{1 + \frac{2n}{n_1 + n_2}}$$

la formule de correction est donc

$$\eta = \eta_a \left(1 + \frac{2n}{n_1 + n_2} \right) \quad (\text{II.2.5})$$

Il est possible d'évaluer n par des mesures d'intensité au voisinage de la raie étudiée et de faire la correction. Nous indiquerons tou-

tefois dans la 3^e partie une autre façon de procéder qui élimine l'influence du bruit de fond dans certaines applications (cf. § 3.2.2.).

Cette correction est d'autant moins importante que n est plus faible. Nous avons vu que l'on pouvait éliminer une partie du bruit de fond à l'aide d'un sélecteur d'amplitude. Or cet appareil a pour effet de retarder toutes les impulsions d'une même quantité ΔT : il en résulte une erreur supplémentaire car certaines impulsions correspondant à l'état 1 du cristal sont enregistrées sur la voie 2. Il est possible de diminuer cette erreur de façon appréciable en introduisant un déphasage convenable entre la commande du champ et celle de la porte. Ce réglage n'est cependant pas parfait et il reste toujours un retard ΔT non compensé dont on doit tenir compte. Le calcul correctif se fait de la façon suivante : avec les notations précédentes, en négligeant le bruit de fond et la différence entre T_1 et T_2 , les nombres d'impulsions enregistrées sur les deux voies pendant le temps T sont :

$$N_1 = \left\{ n_2 \Delta T + n_1 \left(\frac{T}{2} - \Delta T \right) \right\} \frac{t}{T}$$

$$N_2 = \left\{ n_1 \Delta T + n_2 \left(\frac{T}{2} - \Delta T \right) \right\} \frac{t}{T}$$

d'où

$$\eta_a = \frac{N_1 - N_2}{N_1 + N_2} = 2 \frac{(n_1 - n_2) \frac{T}{2} - 2(n_1 - n_2) \Delta T}{(n_1 + n_2) \frac{T}{2}}$$

$$\eta_a = \eta \left(1 - \frac{4 \Delta T}{T} \right) \quad (\text{II.2.6.})$$

Cette formule montre que si le retard ΔT atteignait la moitié de la demi-période l'effet apparent serait nul. En pratique on se place toujours loin de cette valeur. L'ordre de grandeur ΔT est 10^{-5} seconde. La correction est négligeable si $T = 20$ ms. (correspondant à une fréquence de 50 hz), elle ne l'est plus si la modulation doit être plus rapide, ce qui est parfois nécessaire.

2.2.3.4. *Les couplages avec l'oscillateur local.*

Nous avons déjà signalé (§ II.2.1) que les fluctuations qui se produisent à la fréquence de modulation ne sont pas éliminées par la démodulation. Or, la présence de l'oscillateur local et surtout du générateur de champ qui doit être suffisamment puissant induit toujours des fluctuations de ce type. Leur nature est évidemment très différente suivant le phénomène étudié. Par anticipation sur la 3^e partie citons le cas suivant : dans l'étude de l'influence d'un champ magnétique sur une céramique de ferrite l'établissement ou l'interruption du champ magnétique déplace l'échantillon dans le faisceau de rayons X, il en résulte une variation d'intensité diffractée car ce ne sont plus les mêmes microcristaux qui sont irradiés en présence ou en absence de champ. Cette modulation d'intensité est prohibitive, elle doit être éliminée, par exemple en faisant osciller l'échantillon autour de l'axe du goniomètre. Il faut toutefois faire attention à ce que les fréquences d'oscillation et de modulation ne soient pas des multiples l'une de l'autre car on retomberait dans un défaut du même type. Nous verrons par la suite que le problème ne peut être résolu qu'en rendant l'oscillation totalement aléatoire.

Cet exemple montre que les erreurs du type envisagé dans ce paragraphe dépendent de la nature de l'expérience effectuée et doivent être soigneusement discutées dans chaque cas particulier.

2.2.3.5. *Le temps mort des échelles.*

L'étage d'entrée des échelles est équipé d'un système électronique à bascule (flip-flop) dont le déclenchement est provoqué par l'arrivée d'une impulsion. Mais après avoir basculé le flip-flop met un certain temps τ à redevenir capable de basculer à nouveau. Les impulsions qui arrivent pendant ce « temps mort » sont perdues, ce qui diminue l'intensité apparente. Si les deux échelles présentent des temps morts différents les pertes enregistrées sur chacune ne sont pas égales, il en résulte une erreur systématique qu'il faut évaluer.

On montre (F 48, K 45) que si le nombre moyen d'impulsions par unité de temps est n , et le temps mort τ le nombre d'impulsions enregistrées est réduit d'un facteur $e^{-n\tau}$. On enregistre donc en fait $n e^{-n\tau}$ impulsions au lieu de n .

Si les temps morts τ_1 et τ_2 des deux voies sont différents, on

enregistre pendant le temps t respectivement $N_1 = n_1 e^{-n_1 \tau_1 t}$ et $N_2 = n_2 e^{-n_2 \tau_2 t}$ impulsions d'où l'effet apparent :

$$\begin{aligned} \eta_a &= 2 \frac{n_1 e^{-n_1 \tau_1} - n_2 e^{-n_2 \tau_2}}{n_1 e^{-n_1 \tau_1} + n_2 e^{-n_2 \tau_2}} \\ &= 2 \frac{n_1 - n_2 e^{-(n_2 \tau_2 - n_1 \tau_1)}}{n_1 + n_2 e^{-(n_2 \tau_2 - n_1 \tau_1)}} \end{aligned}$$

Ce rapport n'est égal à l'effet réel η que si $n_2 \tau_2$ est voisin de $n_1 \tau_1$: on aura donc toujours avantage à se rapprocher de ces conditions de fonctionnement.

Dans le cas où η est faible, η_1 et η_2 sont voisins et il faut prendre τ_1 et τ_2 voisins : en développant la formule précédente au premier ordre on obtient :

$$\eta = \eta_a + (\tau_2 - \tau_1) \left(\frac{n_1 + n_2}{2} \right) \quad (\text{II.2.7})$$

Par exemple si $n_1 \neq 200$ imp/sec. la correction sera inférieure à 10^{-4} si $\tau_1 - \tau_2$ est inférieur à $\frac{1}{2} 10^{-6}$ sec. Il est donc nécessaire de reprendre le réglage du temps mort des échelles de façon à réduire la différence $\tau_1 - \tau_2$. De toute façon on aura intérêt à travailler avec des échelles à grand pouvoir de résolution (faible temps mort) car même si τ_1 et τ_2 ne sont pas égaux leur différence ne saura être supérieure au plus grand des deux.

2.2.3.6. *Récapitulation.*

En groupant les différentes formules obtenues dans les paragraphes précédents on obtient :

$$\begin{aligned} \eta &= \left\{ \eta_a - \xi + \left(\frac{n_1 + n_2}{2} \right) (\tau_1 - \tau_2) \right\} \\ &\quad \left(1 + \frac{2n}{n_1 + n_2} \right) \left(1 - \frac{4\Delta T}{T} \right)^{-1} \end{aligned} \quad (\text{II.2.8})$$

Les trois corrections que nous avons pu évaluer ne jouent donc pas le même rôle. Le bruit de fond et le retard des impulsions

apparaissent comme des corrections de faible importance. Les inégalités de la durée des états 1 et 2 et des temps morts au contraire sont fondamentales, l'erreur relative qu'elles entraînent peut être considérable. Elle est d'autant plus gênante qu'elle est difficilement évaluable et qu'il s'y superpose l'erreur provenant des périodes de transition dont on ne sait rien dire.

Nous verrons d'ailleurs, après avoir étudié les détails de construction de l'appareil, que ce sont ces deux dernières causes d'erreur qui rendent nécessaires le perfectionnement de la méthode.

§ 2.2.4. *Mise en œuvre et performances de la méthode*

Dans ce paragraphe nous décrivons la réalisation qui a été faite de la méthode précédemment décrite et nous discutons la sensibilité que l'on peut en attendre.

2.2.4.1. *Les différents organes de l'appareil.*

L'appareil se compose d'un certain nombre d'organes : certains sont classiques et même industriels tandis que d'autres sont plus spécifiques du travail entrepris. Nous les citerons tous en insistant toutefois sur les seconds et en analysant les réglages qui sont importants pour assurer le bon comportement de l'ensemble.

Dans cette partie de l'étude le *générateur* utilisé est un appareil industriel du type Rectabloc (CGR), fonctionnant avec une haute tension redressée et filtrée, sans aucune stabilisation. Le tube, démontable, est équipé soit d'une anticathode de cuivre, soit d'une anticathode d'argent obtenue par dépôt électrolytique. Le faisceau est rendu monochromatique par un monochromateur à cristal courbe, type Guinier (G 56) qui assure en outre la focalisation sur la fente d'entrée du goniomètre.

Le goniomètre est à plateau horizontal du type Berthold. Comme détecteur nous avons choisi un compteur à scintillations (C 50,2) de façon à pouvoir séparer le rayonnement X du rayonnement cosmique (cf. § 2.2.3.3.). C'est un appareil commercial (C. G. R.) composé d'un cristal d'iodure de sodium activé au thallium et d'un photomultiplicateur. Son alimentation haute tension est assurée par une alimentation stabilisée type THT4 (E. L. A.).

A la sortie du photomultiplicateur les impulsions sont envoyées sur une mise en forme par l'intermédiaire d'un étage adaptateur

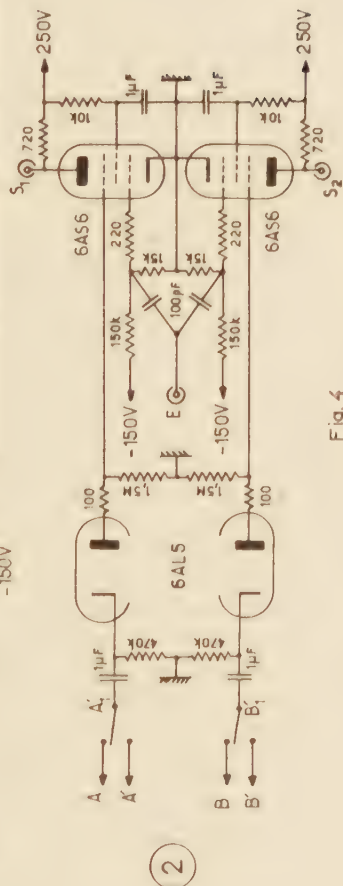
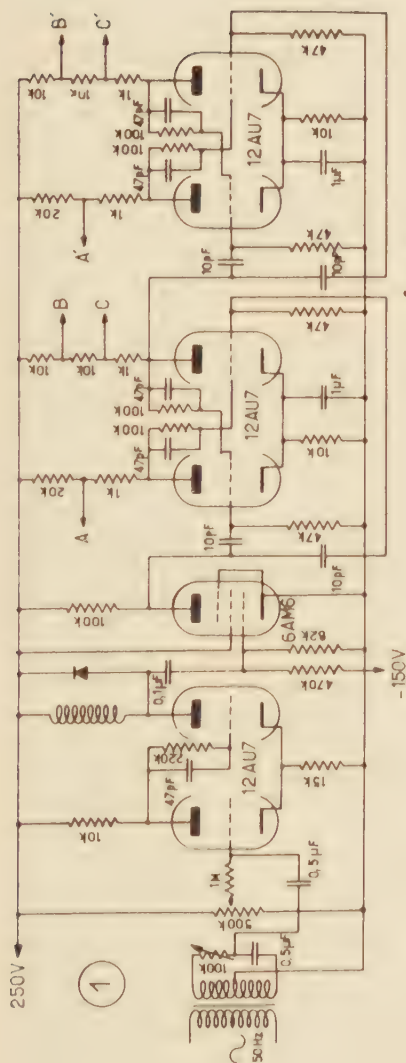


Fig. 4
Générateur de signaux carrés (1) et porte (2)

celles d'oscillateur local et de porte. *L'oscillateur local* est un oscillateur classique stabilisé, l'onde sinusoïdale fournie est transformée en impulsions puis en créneaux par un système de bascules (MT 56). Les exigences essentielles sont la symétrie des créneaux et la rapidité du temps de montée. La figure 4 donne une idée du montage possible, l'amélioration de ses qualités n'a pas été poussée à l'extrême car nous verrons que la seconde méthode proposée n'exige pas cet effort.

Les signaux en forme de créneaux sont envoyés d'une part pour synchroniser le générateur de champ, d'autre part pour faire fonctionner le système de porte. Nous ne décrirons pas ici le *générateur de champ* car sa structure dépend essentiellement des applications envisagées.

Le système de *porte* est schématisé sur la figure 4. Il est essentiellement composé de deux tubes pentodes 6 AS 6 que l'on peut facilement bloquer en agissant sur leur écran : les impulsions arrivent sur les deux grilles montées en parallèle, les créneaux fournis par l'oscillateur local arrivent en opposition de phase sur les écrans, les impulsions qui sortent sur les plaques sont envoyées sur deux échelles de comptage différentes. L'attaque des écrans par des créneaux en opposition de phase assure que l'une des pentodes fonctionne pendant que l'autre est bloquée, d'où le passage des impulsions vers une échelle ou vers l'autre. Cet étage nécessite certains réglages destinés à pallier aux dissymétries que présentent les deux pentodes. Il faut en particulier ajuster les gains pour que les impulsions de sortie aient à peu près la même taille, sans quoi il y a risque que certaines d'entre elles n'arrivent pas à déclencher les échelles de comptage. Si cela se produit c'est un effet parasite gênant car il se superpose à l'effet cherché. Il faut le réduire par le réglage et éliminer le résidu par la technique du comptage (cf. § 3.2.2).

Les *échelles de comptage* numériques sont des ensembles standards du type C. E. A. (Construction E. L. A.). Elles possèdent un système de synchronisme qui permet de la mettre en marche ou de les arrêter simultanément et un temps mort réglable de 1 μ s à 25 μ s.

L'ensemble de l'appareil est complété par un étage *intégrateur* et un *enregistreur* attaqués directement par les impulsions qui proviennent du sélecteur d'amplitude. Leur but est de permettre de repérer la position des raies, et de contrôler la bonne marche de l'ensemble.

2.2.4.2. Contrôles et performances.

Il est possible d'effectuer sur l'appareil différents contrôles de façon à en vérifier la bonne marche, à procéder aux réglages et à évaluer la sensibilité.

Le contrôle et le réglage du sélecteur d'amplitude ne souffrent pas de difficultés. Après avoir mesuré l'amplitude des impulsions provoquées par les rayons X on règle les seuils de sélection en utilisant un générateur d'impulsions étalonné de façon à encadrer la valeur intéressante. Notons en passant que l'amplitude des impulsions dépend dans une certaine mesure de la valeur de la haute tension d'alimentation du scintillateur qui doit être réglée en conséquence.

Ensuite, on envoie sur la porte des impulsions récurrentes dont on choisit la fréquence pour qu'elles n'arrivent jamais dans des périodes de transition. Si l'on décèle une différence entre les nombres N_1 et N_2 elle ne peut être due qu'à une dissymétrie entre les pentodes de la porte. Il y a lieu dans ce cas de reprendre leur réglage. Comme celui-ci ne saurait être parfait, ni surtout se maintenir indéfiniment dans le temps, il faut tenir compte d'une erreur systématique qui, d'après les mesures est certainement inférieure à 10^{-5} . Par exemple un essai effectué avec $T = 20$ ms et des impulsions récurrentes de fréquence 100 hz a donné les résultats suivants :

$$N_1 = 219\ 101 \quad N_2 = 219\ 103 \quad \text{d'où } \eta = \frac{2}{219\ 100} \approx 9.10^{-6}$$

Encore faut-il remarquer que les 2 impulsions de différence sont peut-être produites par le démarrage et l'arrêt des échelles.

Un second essai consiste à envoyer sur la porte des impulsions aléatoires non modulées, obtenues par exemple en arrêtant le fonctionnement du générateur de champ ou en plaçant le détecteur dans le faisceau direct. A la dissymétrie précédemment étudiée se superpose maintenant celle qui provient du fait que certaines impulsions arrivent pendant les périodes de transition et que les temps morts sont inégaux. Malgré les améliorations successives apportées au générateur de créniaux et le réglage des temps morts, il n'a pas été possible de réduire l'erreur résultante au-dessous de 5.10^{-3} . La difficulté provient du fait qu'il faut réduire le temps de montée et de descente des créniaux et surtout du fait qu'il faut que les profils de la montée et de la descente soient identiques. Notons toutefois que la valeur citée pour-

rait être réduite au prix d'une complexité par ailleurs inutile car nous verrons dans le chapitre suivant une méthode qui élimine totalement la difficulté.

2.2.4.3. *Résumé.*

La méthode de simple modulation utilise un tube à émission continue, une modulation du cristal et une démodulation synchrone de la réponse du détecteur. Elle constitue certes un progrès certain par rapport à la méthode classique, mais les erreurs provoquées par les périodes transitoires limitent sa sensibilité à la valeur de $5 \cdot 10^{-3}$ qui est trop élevée pour les applications envisagées.

CHAPITRE 2.3

La Méthode de double modulation

§ 2.3.1. *Principe et discussion*

Les limites rencontrées par la méthode de simple modulation telle qu'elle a été décrite au chapitre 2.2 sont principalement dues au fait que des impulsions atteignent la porte dans les périodes transitoires. Pour éliminer ce défaut il suffit d'empêcher l'arrivée de rayons X pendant ces périodes : soit en arrêtant l'émission du tube, soit en interceptant le faisceau par un écran (G 59).

Considérons par exemple un tube qui émet des rayons X par paquets identiques de durée θ se succédant à la période T (dans l'exemple qui fait l'objet de la 3^e partie on a $\theta = 5$ ms et $T = 20$ ms). On profite de la période relativement longue (15 ms) pendant laquelle il n'y a pas d'émission pour effectuer les opérations suivantes : moduler l'intensité du champ extérieur d'une part, orienter les impulsions dans la bonne voie d'autre part.

Dans ces conditions les rayons X irradient toujours un cristal dans un état bien défini, et jamais pendant que le champ varie. De plus, quand les impulsions atteignent la porte, celle-ci est

ouverte vers une voie déterminée et n'est jamais en cours d'ouverture.

En reprenant la discussion des causes d'erreurs rencontrées au paragraphe 2.2.3 nous constatons que les fluctuations de caractère aléatoires sont inchangées et que les considérations des § 2.2.3.1 et 2.2.3.5 restent valables. Quant aux imperfections de l'oscillateur local, l'influence du délai de transition d'un état dans l'autre est totalement éliminée puisque nous avons choisi la méthode dans ce but. L'inégalité des durées T_1 et T_2 des créneaux, qui était, nous l'avons vu, une cause d'erreur relative importante est elle aussi entièrement éliminée. Ce qui compte maintenant c'est que les paquets successifs de rayons X soient identiques. Dans l'appareil utilisé la haute tension d'alimentation du tube est alternative de fréquence 50 hz, les rayons X ne sont émis que lorsque la valeur est supérieure à un certain seuil, leurs « paquets » se succèdent toutes les 20 ms. Pour qu'il apparaisse une différence systématique entre les paquets de rang pair et ceux de rang impair, il faudrait qu'il se superpose à la haute tension un sous-harmonique de fréquence 25 hz. Cette circonstance est peu vraisemblable. De plus, comme contrôle, nous avons un dispositif qui permet de ne synchroniser la porte qu'à la fréquence 25 hz, c'est-à-dire de grouper les paquets par deux. Nous n'avons jamais constaté de différence entre les résultats obtenus avec les deux fréquences de démodulation. Il est donc justifié de considérer que l'identité des paquets successifs est suffisante.

L'influence du bruit de fond persiste. Toutefois, la correction qui tenait compte du retard ΔT provoqué par l'élimination du rayonnement cosmique n'a plus à être faite. Il suffit de choisir un retard ΔT suffisamment petit par rapport à $T - \theta$ pour que, même après avoir pris du retard, les impulsions n'atteignent pas les périodes de transition. Dans ces conditions il n'y a aucune erreur supplémentaire. (Dans l'appareil utilisé $T - \theta = 15$ ms $\Delta T = 10 \mu s$.)

Les erreurs dues au couplage avec l'oscillateur local et aux temps morts ne sont pas modifiées par rapport à la méthode de simple modulation. Leur discussion dans chaque cas particulier est toujours nécessaire.

Par analogie avec le § 2.2.3.6 écrivons ici

$$\eta = (\eta_a + \frac{n_1 + n_2}{2} (\tau_1 - \tau_2)) (1 + \frac{2n}{n_1 + n_2}) \quad (II.3.1)$$

La première correction à faire est celle du bruit de fond, elle ne présente pas de difficultés. Nous reviendrons sur la correction due aux temps morts (cf. § 2.3.3). La comparaison avec la formule (II.2.8) fait apparaître la supériorité de la méthode de double modulation car les corrections que nous n'avions pas pu évaluer précédemment sont maintenant rigoureusement nulles.

§ 2.3.2. *Réalisation*

L'ensemble de la réalisation est très voisin de celui qui a été décrit précédemment. En toute rigueur il suffit d'ajouter sur la figure 2 une flèche allant de la référence de fréquence au générateur de rayon X pour que le schéma devienne celui de la double modulation. Nous ne décrirons ici que les parties qui sont propres à cette seconde modulation.

La méthode la plus simple de moduler l'émission des rayons X a été évoquée ci-dessus. Elle consiste à prendre un tube dont la haute tension est sinusoïdale : c'est le cas de certains appareils commerciaux (nous avons utilisé le générateur Dictyobloc CGR). Les rayons X sont émis par paquets lorsque la haute tension est suffisamment élevée. La fréquence des paquets est celle du réseau d'alimentation (soit 50 Hz). Ce dernier joue donc le rôle de référence de fréquence. Cet organe se trouve donc réduit à un transformateur et un ensemble condensateur potentiomètre qui joue le rôle de déphaseur. La réalisation de la porte n'est pas modifiée. L'avantage de cette méthode est sa simplicité. En particulier elle permet de disposer, à la bonne fréquence, de toute la puissance nécessaire au générateur de champ.

Dans certaines applications il peut être nécessaire de choisir une fréquence différente de 50 Hz. Ce serait le cas par exemple pour l'étude des vibrations d'un quartz : on aurait intérêt à se placer à la fréquence de résonance du cristal utilisé et à moduler l'ensemble de l'appareil sur cette fréquence. Pour la partie électronique cela soulève peu de difficultés. Pour la modulation de l'émission X on peut envisager, soit d'alimenter le tube à la même fréquence, soit d'interrompre périodiquement un faisceau continu. La première solution exige la réalisation d'une alimentation haute tension de puissance moyenne (quelque 500 W) à des fréquences déjà importantes (plusieurs kHz), ceci est possible mais non simple. La seconde solution peut se réaliser en interrompant le faisceau par des écrans au plomb animés d'un mouvement périodique par l'intermédiaire d'un moteur ou d'un vibreur.

§ 2.3.3. Contrôles et Performances

2.3.3.1. Les contrôles que l'on effectue sont les mêmes que ceux décrits au § 2.2.4.2. Le réglage des seuils du sélecteur d'amplitude n'a pas à être modifié, celui de la dissymétrie des pentodes de la porte non plus.

L'utilisation d'impulsions aléatoires non modulées permet cette fois d'apprécier l'effet dû à l'inégalité des temps morts puisque l'effet dû aux périodes de transition a complètement disparu. Des résultats différents ont été obtenus suivant le type d'échelles utilisé.

Avec des échelles de type ancien à caractéristiques non précisées il n'a pas été possible de réduire l'effet parasite à moins de 10 %. Ceci n'est d'ailleurs pas très gênant quand il s'agit de mesurer des effets du même ordre de grandeur. Les résultats s'obtiennent par comparaison des courbes avec ou sans modulation (cf. § 3.2.2 et figure 9), l'inégalité des temps morts correspond alors à un simple décalage du zéro.

Si l'effet recherché était plus petit ce décalage serait prohibitif, mais en utilisant des échelles de constructions plus récentes pour lesquelles le constructeur assure que les temps morts sont égaux à 1 μ s à $\pm$ 15 % près et en améliorant le réglage, nous avons pu réduire l'effet parasite à une valeur inférieure à 10 %. Par exemple un contrôle effectué avec ces échelles et des impulsions aléatoires sans modulation du cristal a donné les écarts $N_1 - N_2$ suivants :

$\frac{N_1 + N_2}{2}$	$N_1 - N_2$	$10^6 \eta_n$
1.466.000	— 94	— 6
2.248.000	— 1462	— 65
2.970.000	— 826	— 28
3.650.000	+ 1450	+ 40
4.420.000	+ 1676	+ 38
5.569.000	+ 520	+ 9
6.451.000	+ 1018	+ 16
7.093.000	— 286	— 4
7.874.000	— 453	— 6
8.682.000	— 1174	— 14
9.025.000	— 1792	— 20

la moyenne des valeurs de η_n est inférieure à 10^{-5} . Il est hors de doute que l'utilisation d'échelles plus rapides améliorerait encore cette performance.

2.3.3.2. *Résumé.*

La méthode de double modulation utilise un faisceau incident dont l'intensité est modulée. Elle constitue un progrès certain par rapport à la méthode de simple modulation car les erreurs systématiques les plus gênantes ont été éliminées. Il reste l'erreur due aux fluctuations de l'émission X qui ne saurait être supprimée mais à laquelle on échappe en enregistrant un nombre suffisant d'impulsions. L'erreur due à l'inégalité des temps morts a été réduite par l'emploi de nouvelles échelles et pourrait certainement l'être à nouveau, si bien que la sensibilité de 10^{-5} que nous avons atteinte ne semble pas être l'ultime limite de la méthode.

TROISIEME PARTIE

UN EXEMPLE D'APPLICATION

CHAPITRE 3.1

La Magnétostriction du Ferrite de Cobalt

Afin d'illustrer la méthode de spectrométrie différentielle exposée dans la 2^e partie, nous allons développer l'application qui en a été faite à la magnétostriction d'un ferrite de cobalt.

3.1.1. Généralités

Si l'on soumet un cristal ferromagnétique à un champ magnétique on observe une variation de ses dimensions. C'est le phénomène de la magnétostriction (B 51). Il est dû à un réarrangement de la structure cristalline tel que l'équilibre thermodynamique du cristal demeure assuré en présence du champ magnétique. Ce phénomène a été observé à l'échelle macroscopique en mesurant la variation relative de longueur de monocristaux de taille suffisante ou de bâtonnets d'échantillons microcristallins (W 50). Notre but est de mettre en évidence les variations microscopiques de structure cristalline dont l'accumulation produit les phénomènes macroscopiques déjà observés.

Pour un cristal cubique soumis à un champ magnétique suffisamment intense pour le saturer la variation relative de longueur est donnée par (B 51) :

$$\frac{\Delta \rho}{\rho} = \frac{3}{2} \lambda_{100} (\alpha_1^2 \beta_1^2 + \alpha_2^2 \beta_2^2 + \alpha_3^2 \beta_3^2 - \frac{1}{3}) + 3\lambda_{111} (\alpha_1 \alpha_2 \beta_1 \beta_2 + \alpha_2 \alpha_3 \beta_2 \beta_3 + \alpha_3 \alpha_1 \beta_3 \beta_1) \quad (\text{III.1.1})$$

où les α_i sont les cosinus directeurs de la direction de saturation et les β_i ceux de la direction dans laquelle on mesure la variation de longueur. Ces cosinus directeurs sont évalués dans le système d'axes trirectangulaires de la maille cristalline.

On relève dans la littérature (B 55, V 52, BW 52) les valeurs suivantes des coefficients :

	100	111
Ni	— 46 10^{-6}	— 24 10^{-6}
Fe ₂ CoO ₄	— 600 10^{-6}	120 10^{-6}

où l'on a cité le nickel à titre de comparaison.

Les valeurs élevées constatées pour le ferrite de cobalt nous ont conduit à choisir ce matériau. En l'absence de champ sa structure est du type spinelle : la cellule unité est cubique de côté $a = 8,35 \text{ \AA}$ (fig. 5). En présence de champ la structure est modifiée : on s'attend à ce que la symétrie cubique ne soit pas conservée, qu'il y ait des variations des paramètres et du motif cristallins. Nous chercherons donc à mettre en évidence d'une part un déplacement des raies diffractées et d'autre part une variation de leur intensité. Pour cela nous commençons par évaluer théoriquement le déplacement des raies à l'aide des résultats des mesures macroscopiques rappelées ci-dessus.

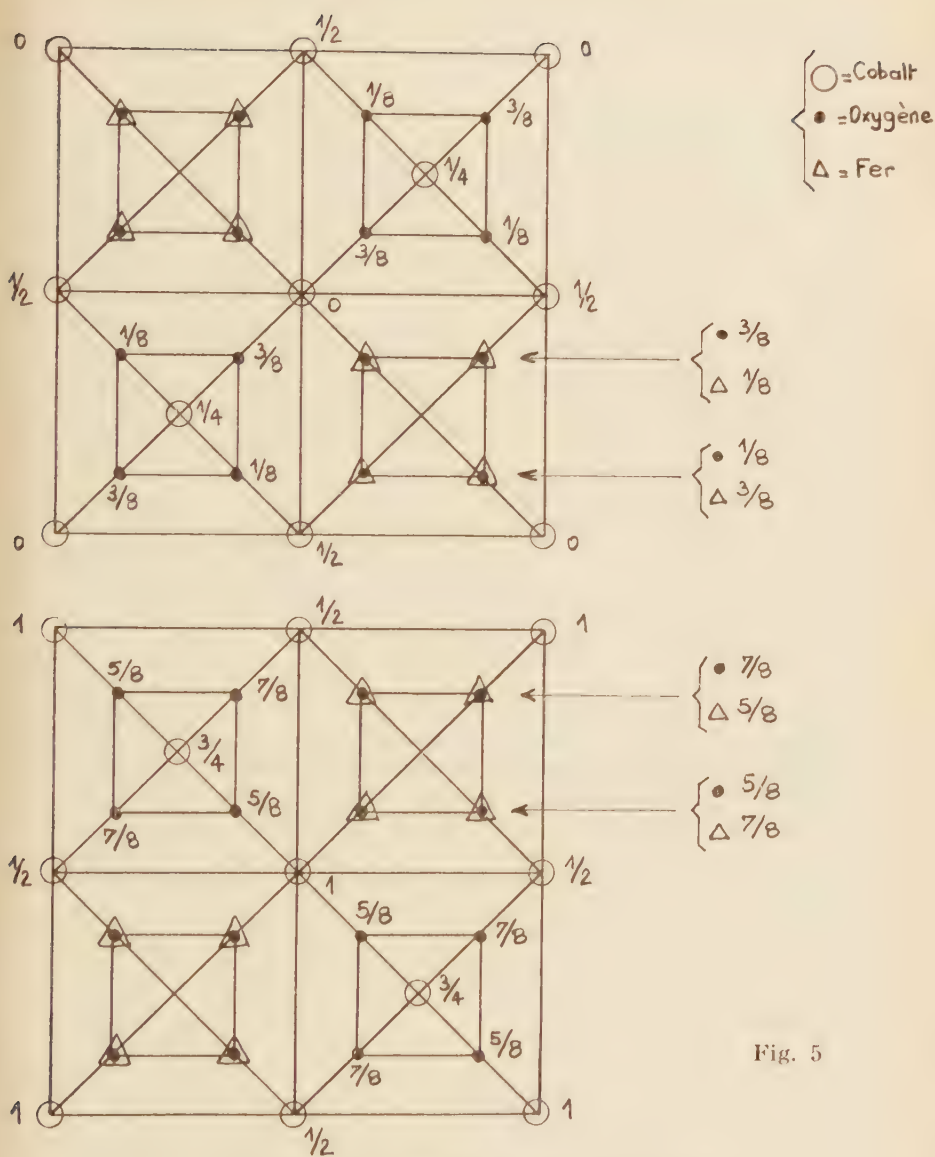


Fig. 5

STRUCTURE DU FERRITE DE COBALT ($\text{Fe}_2\text{O}_4\text{Co}$)

Projection cotée sur le plan (1,0,0) des deux demi-maill

élémentaires ($0 \leq c \leq \frac{a}{2}$ et $\frac{a}{2} \leq c \leq a$).

Les cotes des ● et △ superposés sont alternativement 1/8 et 3/8 ou 5/8 et 7/8.

3.1.2. Calcul des déplacements des raies diffractées

Pour faire ce calcul nous supposons que la direction de magnétisation fait un angle φ avec les plans diffractants. La disposition est alors celle de la figure 6. La direction d'observa-

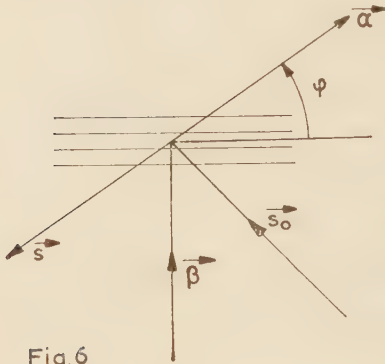


Fig.6

tion β est perpendiculaire aux plans diffractants puisque c'est la distance entre ces plans qui figure dans la formule de Bragg. β est donc le vecteur unitaire de la direction définie par les indices, h, k, l . Dans une poudre, les microcristaux qui sont en position de Bragg ne sont pas équivalents car l'orientation

du champ magnétique par rapport aux axes cristallins n'est pas la même pour tous. La variation relative $\frac{\Delta \ell}{\ell}$ de distance interréticulaire et le déplacement $\Delta \theta$ ne sont donc pas les mêmes. Mais, si l'on suppose que les microcristaux sont répartis au hasard et que l'on fait osciller l'ensemble cristal-champ magnétique autour d'une position moyenne de façon à amener le plus de cristaux possibles en position de réflexion, il est légitime de faire la moyenne des différents $\frac{\Delta \ell}{\ell}$ pour calculer le déplacement $\Delta \theta$ observé.

Les calculs sont explicités dans l'annexe 3. On obtient

$$\left(\frac{\Delta \ell}{\ell} \right)_{\text{moyen}} = \left(\lambda_{100} + 3(-\lambda_{100} + \lambda_{111}) S \right) \left(1 - \frac{3}{2} \cos^2 \varphi \right) \quad (\text{III.1.2})$$

avec

$$S = \frac{h_2 k_2 + k_2 l_2 + l_2 h_2}{(h^2 + k^2 + l^2)} \quad (\text{III.1.3})$$

Pratiquement on cherche à se placer de façon que le facteur $1 - \frac{3}{2} \cos^2 \varphi$ soit le plus grand possible, mais la solution $\varphi = \frac{\pi}{2}$ est géométriquement difficile à réaliser à cause de l'écran que forment les pièces polaires de l'électroaimant. On se contente de $\varphi = 0$ pour lequel l'effet n'est que la moitié du maximum mais dont la réalisation est beaucoup plus facile.

Le calcul de $\frac{\Delta \rho}{\rho}$ et de $\Delta \theta$ a été effectué avec les valeurs de λ_{100} , λ_{111} précédemment données, la longueur d'onde de Mo $K\alpha$, et un paramètre cristallin $a = 8,35 \text{ \AA}$. Les résultats sont consignés dans le tableau I.

Dans ce calcul nous avons évalué le déplacement moyen $\Delta \theta$ résultant de la superposition de l'effet produit par chacun des microcristaux qui sont en position de Bragg. Comme tous ces microcristaux ne donnent pas le même déplacement on pourrait penser qu'il en résulte une déformation de la raie diffractée. Il n'en est rien en première approximation. En effet si l'on repère par l'angle ψ la position d'un microcristal on obtient un déplacement de la forme

$$\Delta \theta = \Delta A + \Delta B \cos(\psi - \psi_0)$$

C'est ΔA qui donne le déplacement moyen que nous avons calculé ci-dessus. Le terme en ΔB provoque effectivement une déformation, mais, puisque la probabilité de réalisation des orientations $\psi - \psi_0$ et $\pi - (\psi - \psi_0)$ est la même, la déformation totale est une fonction paire de ΔB . C'est donc au plus un effet du second ordre. Dans l'exemple étudié l'augmentation de largeur de raie due à cet effet serait inférieure à $3 \cdot 10^{-3} \text{ mn}$.

TABLEAU I. — CALCUL THÉORIQUE DES DÉPLACEMENTS $\Delta\theta$

h, k, l	S	$\ell'(\text{\AA})$	$10^4 \Delta \ell'$	θ	$\Delta\theta(\text{minutes})$
			ℓ'		
220	0,250	2,953	0,50	6° 54'	0,02
311	0,157	2,518	1,43	8° 6'	0,07
222	0,333	2,410	— 0,33	8° 27'	— 0,02
400	0	2,088	3,00	9° 48'	0,18
422	0,250	1,704	0,50	12° 01'	+ 0,04
511	0,070	1,607	2,30	12° 45'	0,18
333	0,333		— 0,33		— 0,03
440	0,250	1,476	0,50	13° 54'	0,04
620	0,090	1,320	2,10	15° 36'	0,20
533	0,287	1,273	0,13	16° 12'	0,01
622	0,157	1,259	1,43	16° 24'	0,14
444	0,333	1,205	— 0,33	17° 06'	0,04
642	0,250	1,116	0,50	18° 31'	0,06
553	0,309	1,087	— 0,09	19° 02'	— 0,01
731	0,144		1,56		0,18
800	0	1,044	3,00	19° 51'	0,37
660	0,250	0,984	0,50	21° 8'	0,07
555	0,333	0,964	— 0,33	21° 34'	— 0,05
662	0,275	0,958	0,25	21° 42'	0,03
840	0,160	0,934	1,40	22° 18'	0,19

Technique de la Mesure

3.2.1. Préparation des échantillons et génération du champ magnétique

Les échantillons sont des céramiques obtenues par frittage du mélange en proportion stoechiométrique des oxydes de fer Fe_2O_3 et de cobalt CoO . La température de cuisson était de 1280°C . La masse spécifique du produit final atteint 5.0 g/cm^3 . Cette valeur est sensiblement supérieure à celle, $3,75\text{ g/cm}^3$, qui est mentionnée dans les travaux antérieurs (G 53). Par extrapolation de ces mêmes travaux on en déduit que le champ magnétique susceptible de saturer l'échantillon est inférieur à $0,4\text{ W m}^{-2}$. Le barreau initial est coupé en tranches minces de $1,5\text{ mm}$ d'épaisseur qui sont placées dans l'entrefer d'un petit électroaimant spécialement construit.

Le champ magnétique dans l'entrefer atteint $0,6\text{ Wm}^{-2}$ quand l'intensité du courant est de 6 A . La modulation du champ est obtenue à partir du signal de référence fourni par l'oscillateur local (cf. § 2.2.4.1 et 2.3.2). Ce signal sert à attaquer un amplificateur de courant à transistors (figure 7) qui alimente les bobines de l'électroaimant. Malgré les valeurs relativement importantes du coefficient de self induction et de l'intensité, le temps d'installation du champ magnétique est inférieur à 2 ms . Cette valeur n'est pas prohibitive pour la mise en œuvre correcte de la méthode de double démodulation (cf. § 2.3.1). Remarquons qu'elle le serait dans la méthode de simple modulation.

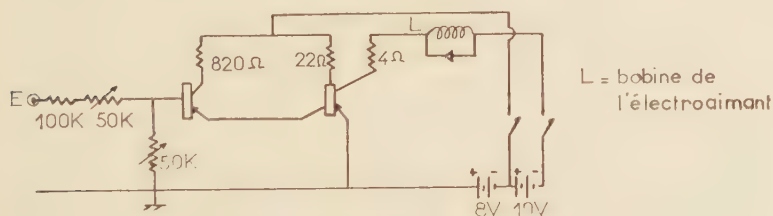


Fig 7 Alimentation de l'électroaimant

3.2.2. Tracé des profils et mesure de la variation d'intensité de la raie

Avant de faire la mesure proprement dite, il est nécessaire de se fixer une référence. Pour cela on commence par tracer le profil de la raie choisie en l'explorant avec une fente fine (largeur 0,2 mm correspondant à un angle de 1,4 minute). En l'absence de champ,

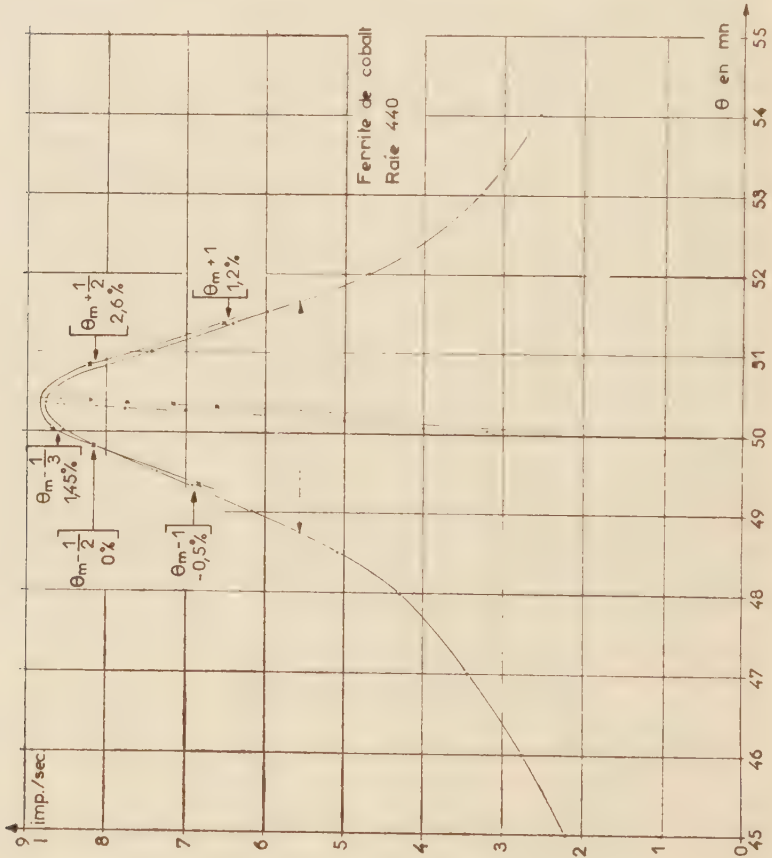


Fig. 8
Courbes $l_1(\theta)$ et $l_2(\theta)$

on mesure ainsi de minute en minute le nombre moyen d'impulsions reçues par seconde et l'on trace la courbe $I_1(\theta)$ (fig. 8).

On choisit ensuite sur ce profil le point où l'on veut faire une mesure et l'on y place la fente d'entrée du détecteur en maintenant la même largeur que précédemment. On met en marche le système de modulation et de démodulation et on attend assez longtemps pour mesurer les variations relatives d'intensité avec la précision souhaitée, soit η_a le résultat. On en déduit l'intensité $I_2(\theta)$ en présence de champ par la formule :

$$I_2(\theta) = I_1(\theta) (1 + \eta_a) \quad (\text{III.2.1})$$

où l'on suppose $\eta_a \ll 1$, et où $I_1(\theta)$ est fourni par la mesure préliminaire.

Il suffit de répéter cette mesure pour différents angles et de tracer sur un même graphique les variations de $I_1(\theta)$ et $I_2(\theta)$ pour faire apparaître les modifications apportées par le champ magnétique (cf. figure 8).

Cette technique de mesure permet de ne pas tenir compte du bruit de fond car celui-ci intervient de la même manière en présence ou en l'absence de champ. L'effet apparent η_a est plus faible que l'effet réel η (cf. § 2.3.1 et formule II.3.1 et § 22.3.3). Mais comme $I_1(\theta)$ et $I_2(\theta)$ englobent tous deux le bruit de fond c'est bien η_a qui intervient dans la formule III.2.1.

Pour mesurer la variation globale d'intensité on opère avec une fente assez large pour couvrir tout le domaine de diffraction et placée de façon à ce que ses bords soient dans des régions où l'intensité $I(\theta)$ ne dépend plus de θ . Cette disposition a pour but d'éliminer l'erreur qui pourrait provenir du déplacement de la raie. La mesure se fait normalement mais ici il faut tenir compte de la correction due au bruit de fond car c'est l'effet réel η qui nous intéresse.

Dans toutes ces mesures c'est l'élimination des fluctuations statistiques qui fixe la durée des expériences. Il a été jugé bon de procéder de la façon suivante : on opère avec modulation pendant un certain temps, une heure par exemple, puis sans modulation pendant l'heure suivante, puis à nouveau avec modulation, puis à nouveau sans modulation, etc. On obtient ainsi des résultats portant sur des nombres de plus en plus grands. Si l'on représente l'effet η en fonction du nombre d'impulsions N on obtient une série de points répartis statistiquement mais convergeant vers la valeur cherchée (fig. 9). Si l'on encadre cette courbe par les

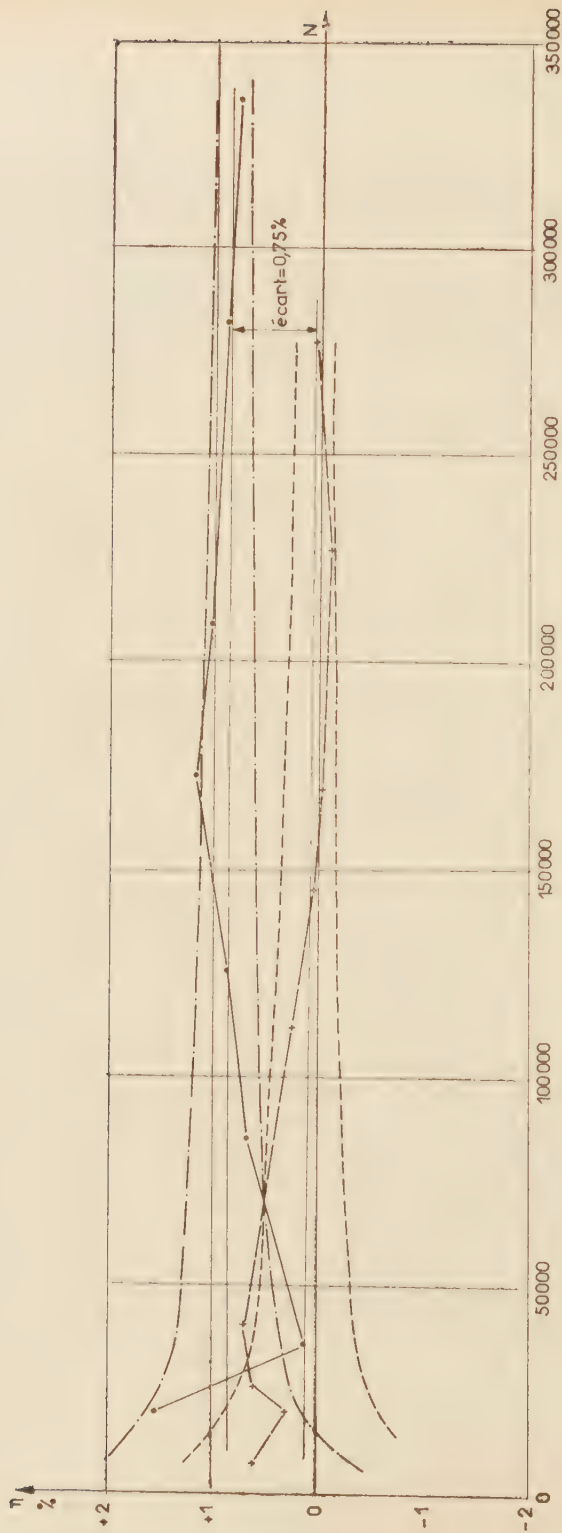


Fig. 9

Raie 440

Mesure du $\frac{\Delta I}{I}$ global

Variations de $\eta = \frac{\Delta N}{N}$ en fonction de N

Ecart entre les axes $= \frac{\Delta I}{I}$ global $= 0,75\%$

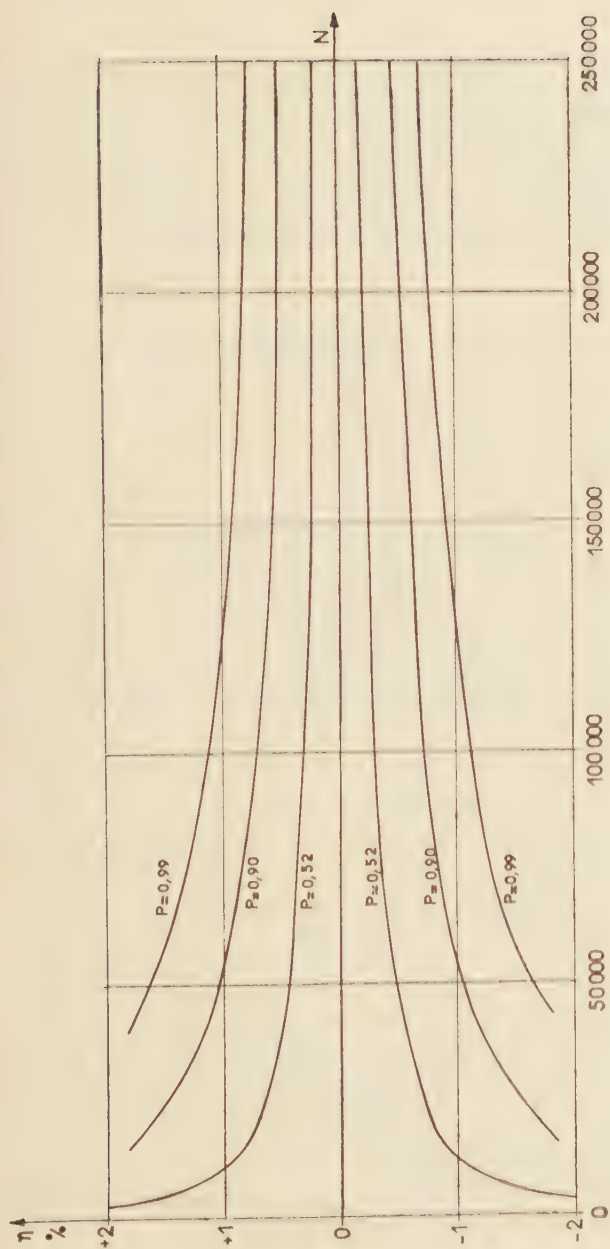


Fig.10

Erreur statistique en fonction de N pour différentes probabilités P .

courbes du réseau donnant la probabilité d'avoir une erreur statistique déterminée (cf. annexe 2 et figure 10), il est possible de se rendre compte du bon déroulement de la mesure et d'évaluer le résultat avec une précision supérieure à ce que laisserait prévoir le nombre total d'impulsions enregistrées. L'intérêt de faire une expérience parallèle en l'absence de champ est d'éliminer les erreurs résiduelles qui peuvent provenir du système de démodulation (cf. § 2.2.3) et de détecter les pannes éventuelles.

3.2.3. *Nécessité d'une oscillation aléatoire de l'échantillon*

Avant de donner les résultats des mesures et pour décrire un exemple d'élimination des erreurs qui peuvent provenir d'un couplage avec l'oscillateur local, nous allons développer l'étude qui a été esquissée au § 2.2.3.4.

Au cours des premières mesures effectuées avec un échantillon fixe il est apparu que les résultats étaient incohérents. Cela provenait de ce que la plaquette de ferrite se déplaçait dans le faisceau de rayons X quand le champ magnétique était appliqué, il en résultait une variation d'intensité diffractée car ce n'était plus les mêmes microcristaux qui étaient en jeu en présence ou en l'absence de champ. Comme cette variation était à la fréquence même de modulation elle n'était pas éliminée par la démodulation.

En analysant ce phénomène on trouve que le déplacement a pour origine, soit une force due à l'inhomogénéité du champ magnétique, soit à la magnétostriction du fer qui constitue la pièce polaire sur laquelle est fixé l'échantillon. Ces causes de déplacement ne sont pas faciles à éliminer. Il a été jugé préférable de faire osciller l'échantillon autour de l'axe du goniomètre de façon à amener successivement en position de Bragg le plus de microcristaux possible. Encore faut-il que chaque fois qu'un microcristal donné passe par une position de réflexion on ne puisse pas affirmer qu'il y a ou qu'il n'y a pas de champ appliqué. Il faut en effet éviter que chaque microcristal ne contribue à alimenter préférentiellement une voie déterminée. On peut penser qu'il suffit qu'il n'y ait pas de relation simple entre les périodes pour que ceci soit réalisé. Or, compte tenu des ordres de grandeurs des périodes de la modulation (20 ms.), de l'oscillation (60 s.) et des durées d'expérience (3.600 s.) il est vain d'espérer que la période de l'oscillation ne soit pas très proche d'un multiple simple de la période de la modulation.

La seule façon de procéder est d'introduire entre les deux phénomènes périodiques un déphasage qui soit totalement aléatoire. On parvient à cela en arrêtant l'oscillation et en la reprenant à des instants quelconques, sans aucune relation avec la modulation. Nous avons réalisé un dispositif qui atteint ce but en utilisant les impulsions elles-mêmes pour actionner un relais qui arrête le moteur de commande de l'oscillation. Le schéma en est donné sur la figure 11.

Les résultats ont été conformes à nos espérances et depuis la mise en œuvre du système d'oscillation aléatoire les mesures ont été cohérentes et reproductibles.

3.2.4. Résultats

Nous nous sommes attachés à étudier en détail une raie déterminée plutôt qu'à explorer superficiellement l'ensemble du spectre. Car notre but est plus de montrer les possibilités de la méthode que d'étudier en détail la magnétostriction.

La raie choisie est la raie 440 qui est parmi les plus intenses du spectre. L'angle de Bragg correspondant avec $a = 8,35 \text{ \AA}$ et le rayonnement $\text{MoK}\alpha$ est $\theta = 13^\circ 54'$. Pour éviter les erreurs dues au réglage du zéro du goniomètre nous nous sommes astreints à chaque mesure à retracer le profil de la raie et à repérer la position de mesure par rapport à la position du maximum d'intensité θ_m .

Les résultats sont récapitulés sur la figure 8. Le taux de modulation η est négatif pour les angles faibles, il s'annule au voisi-

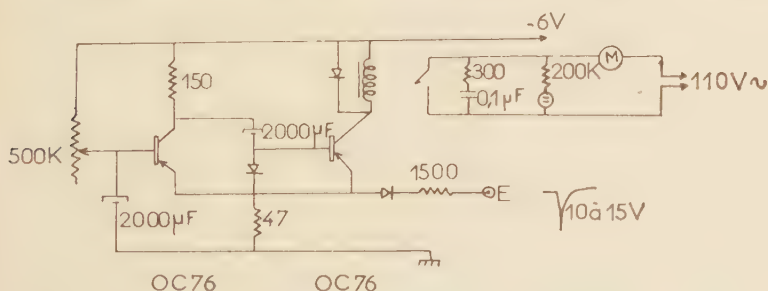


Fig 11 Relais de commande aléatoire du moteur

nage du maximum et devient positif au-delà. Il apparaît donc un déplacement de la raie vers les θ croissants. Pour l'évaluer nous avons tracé les milieux des segments qui joignent les points correspondant à une même intensité de chaque côté du maximum. Ces milieux s'alignent sur un « diamètre ». Le décalage des diamètres permet d'évaluer $\Delta\theta = 0,05$ mn.

Un simple examen des courbes ne permet pas de déceler un élargissement. Une analyse plus détaillée se révèle nécessaire, elle sera discutée ci-dessous.

Par contre, on s'attend à une légère augmentation de l'intensité globale. La mesure directe (cf. figure 9) fournit la valeur

$$\eta_a = \left(\frac{\Delta I}{I} \right)_{\text{global}} = 0,75 \%$$

avant la correction due au bruit de fond.

D'autres résultats partiels ont été obtenus : une mesure unique sur le flanc de la raie 333 ($\theta = 12^\circ 45'$) donne $\eta_a = 0,7 \%$, ce qui, associé à la valeur correspondante de $\frac{1}{I} \frac{dI}{d\theta}$, laisse présager un déplacement de l'ordre de $\Delta\theta = -0,026$ minute.

De plus, la variation de l'intensité globale de la raie 311 ($\theta = 8^\circ 6'$) a été mesurée : elle est de $0,2 \%$ (avant correction).

La discussion de ces différents résultats et les corrections à leur faire subir sont reportées au chapitre suivant.

CHAPITRE 3.3

Discussion

3.3.1. Analyse des résultats

Dans ce paragraphe nous décrivons la méthode utilisée pour analyser les formes des raies diffractées. Nous admettons (J 38, S 46, S 48) et l'expérience vérifie que la répartition de l'intensité peut être représentée par une formule du type :

$$I(\theta) = \frac{I_m a^2}{x^2 + a^2} + I_f \quad (\text{III.3.1})$$

où $x = \theta - \theta_m$ représente l'écart par rapport au maximum, a la « demi-largeur » de la raie, et I_f l'intensité du bruit de fond. Nous appellerons I_0 la valeur du maximum.

$$I_0 = I_m + I_f \quad (\text{III.3.2})$$

I_m apparaît comme l'intensité maximum vraie de la raie.

La relation III.3.1 peut s'écrire

$$\frac{x^2}{I_0 - I} = \frac{1}{I_m} x^2 + \frac{a^2}{I_m} \quad (\text{III.3.1}')$$

il existe donc une relation linéaire entre x^2 et $\frac{x^2}{I_0 - I}$ dont la représentation graphique permet de déterminer a et I_m .

Pratiquement on prend pour x la demi-largeur de la raie mesurée à la hauteur I , et l'on essaie différentes valeurs pour I_0 de façon à ce que les points obtenus s'alignent au mieux. L'ana-

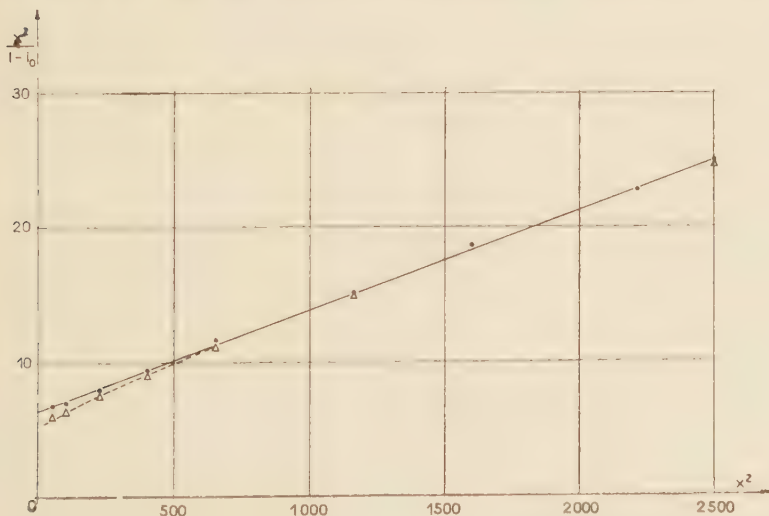


Fig. 12A

• $I_0 = 176$ Δ $I_0 = 177$

lyse de la raie 440 est faite de cette façon : les valeurs calculées, en prenant comme unité le millimètre de la figure 8, sont reportées sur le tableau II pour deux valeurs de I_m , les courbes correspondantes sont tracées sur la figure 12(A). L'alignement des points est satisfaisant pour $I_0 = 176$ mm., on en déduit avec ces unités :

$I_0 = 176$ mm., $I_m = 135$ mm., $I_f = 41$ mm., $a = 29,4$ mm.

La même analyse s'applique difficilement à la raie obtenue en présence de champ magnétique car on ne connaît que quelques points par ailleurs trop voisins du sommet. On procède alors en admettant que le bruit de fond est le même qu'en l'absence de champ et en écrivant :

$$(I - I_f)x^2 = a^2(I - I_f) - I_m a^2 \quad (\text{III.3.2})$$

En traçant les variations de $(I - I_f)$ en fonction de $(I - I_f)x^2$ (fig. 12.B) on obtient une droite dont la pente est $\frac{1}{a^2}$ et l'ordonnée à l'origine I_m . Le relevé des valeurs sur le graphique donne :

$a = 29,9$ mm.

$I_m = 136$ mm.

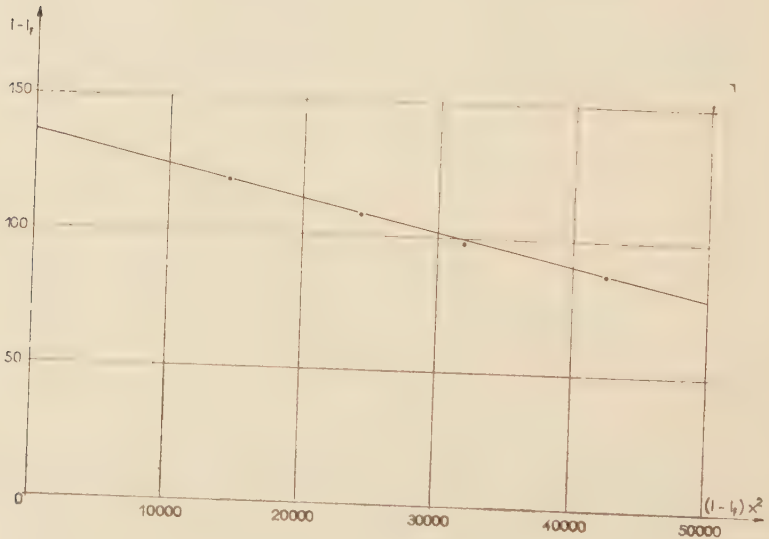


Fig. 12 B

On constate donc une très légère augmentation de la largeur et de la hauteur de la raie.

Les résultats précédents permettent d'évaluer l'intensité intégrée. En admettant que la forme III.3.1 est valable pour toutes les valeurs de x , on a

$$I = \int I(\theta) d\theta = \int_{-\infty}^{+\infty} \frac{I_m a^2}{x^2 + a^2} dx = \pi a I_m \quad (\text{III.3.3})$$

Les valeurs numériques donnent $I_1 = 12.450 \text{ mm}^2$ en l'absence de champ et $I_1 = 12.790 \text{ mm}^2$ en présence de champ.

3.3.2. Discussion du déplacement et de l'élargissement

L'unique résultat obtenu pour la raie 333, $\Delta\theta = -0,026 \text{ mn.}$ semble en bon accord avec la théorie. Bien qu'elle ait été mesurée dans la région de pente maximum de la raie, il ne faut pas accorder à cette valeur d'autre signification que celle d'un ordre de grandeur, car on ne possède pas de renseignement sur l'éventuel élargissement de la raie. La faiblesse du déplacement nous a incité à choisir une autre raie pour en faire l'étude détaillée.

La raie 440 a été choisie parce que son intensité est relativement forte, ce qui a pour effet de réduire la durée des mesures. Le déplacement évalué sur la figure 8 est $\Delta\theta = 0,05 \text{ minute.}$ Le calcul théorique (§ 3.1.2) a donné $0,04 \text{ minute.}$ L'accord entre ces deux chiffres est satisfaisant compte tenu de la faible précision de la mesure. Ce résultat isolé ne permet certes pas de remonter jusqu'aux valeurs de λ_{100} et λ_{111} , mais il suffit pour mettre en évidence l'existence du déplacement des raies par action du champ magnétique et pour confirmer la valeur des hypothèses faites lors du calcul théorique du § 3.1.2.

L'analyse des résultats effectuée au paragraphe précédent semble montrer un élargissement de la raie : passage de $29,4 \text{ mm.}$ à $29,9 \text{ mm.}$ La variation est trop petite pour que l'on puisse valablement affirmer qu'elle n'est pas due aux erreurs expérimentales. L'expérience permet simplement de conclure que si l'élargissement existe il est inférieur en valeur relative à 3 %.

Cette valeur est considérablement inférieure à celle que rapporte Merz (M 60) dont les résultats sont les suivants : pour un monocristal de ferrite de cobalt-zinc l'élargissement des raies atteint, suivant le traitement thermique de l'échantillon et l'orien-

tation du champ magnétique, des valeurs comprises entre 20 % et 145 %. La différence entre les résultats de Merz et les nôtres provient sans doute de ce que notre étude porte sur une céramique tandis que celle de Merz porte sur des monocristaux. L'apparition des contraintes par magnétostriction des monocristaux peut expliquer l'élargissement des raies. Les articles qui, à notre connaissance, traitent des paramètres qui fixent la largeur des raies (A 50, A 54, W 48, B 42) prennent en considération l'état des contraintes internes du cristal et montrent par exemple que dans les métaux écrouis la largeur des raies est augmentée par la présence des contraintes internes. Il ne semble pas que de telles contraintes puissent se développer dans les cristallites qui constituent nos céramiques ce qui expliquerait l'absence (ou du moins la très faible importance) de l'élargissement des raies. Cette explication est d'ailleurs corroborée par l'étude de la variation de l'intensité intégrée.

3.3.3. *Discussion de la variation d'intensité intégrée*

La mesure directe de la variation d'intensité intégrée a été faite avec une fente large (10 minutes d'arc) le résultat brut est de + 0,75 % (cf. § 3.2.4). Il y a lieu de faire la correction due au bruit de fond (cf. § 2.2.3.3). Pour cela on part du profil de la figure 8 et on évalue par une méthode gravimétrique le rapport des aires correspondant à la totalité du rayonnement d'une part et à ce qui reste après suppression du bruit de fond d'autre part (on utilise alors le résultat $I_f = 41$ mm. obtenu au § 3.3.1). Ce rapport vaut 1,85. La variation d'intensité globale est donc après correction :

$$\left(\frac{\Delta I}{I} \right)_{\text{global}} = 0,75 \times 1,85 = 1,4 \, \%.$$

La considération des figures 8 et 9 permet d'affirmer que cette valeur est connue à mieux de 0,2 % près.

La comparaison avec les travaux de Merz déjà cités (M 60) fait apparaître à nouveau une très forte différence :

Merz constate sur des monocristaux des variations d'intensité allant de 25 % à 104 %. L'explication de cet écart est le même que précédemment; dans les monocristaux la magnétostriction fait apparaître aux limites des domaines des contraintes qui aug-

mentent dans de fortes proportions le pouvoir réflecteur. Les microcristaux de la céramique au contraire échappent à ces contraintes car chacun d'entre eux est monodomaine.

L'effet résiduel de 1,4 % peut d'ailleurs s'interpréter d'une autre façon : pendant la magnétisation la répartition des atomes dans la maille est légèrement modifiée, il en résulte une variation du facteur de structure, donc de l'intensité. En l'absence de données précises sur les déplacements atomiques dans la maille il est impossible d'évaluer la variation relative du facteur de structure, mais il semble bien qu'en admettant des déplacements compatibles avec les rayons ioniques et les constantes élastiques du matériau on trouve des résultats du bon ordre de grandeur.

3.3.4. Conclusion partielle

Bien qu'en abordant l'étude de la magnétostriction notre but ait été de montrer sur un exemple l'intérêt de la méthode de double modulation en spectrométrie différentielle, nous avons recueilli un certain nombre de résultats sur la magnétostriction du ferrite de cobalt.

Nous avons en effet montré qu'il était possible de déceler et d'évaluer le déplacement des raies sous l'action du champ magnétique. Ce déplacement est d'un ordre de grandeur parfaitement compatible avec les valeurs des paramètres de la magnétostriction mesurées par des méthodes macroscopiques.

Nous avons en outre montré que la magnétisation des microcristaux qui constituent la céramique n'engendre pas de contraintes car il n'y a pratiquement pas d'élargissement des raies et seulement une très faible variation de l'intensité intégrée. Cette dernière variation peut d'ailleurs s'expliquer par la modification du motif cristallin et ce pourrait être l'objet d'un travail ultérieur d'étudier méthodiquement les variations de facteur de structure de toutes les raies, de façon à en déduire le déplacement des différents atomes dans la maille.

TABEAU II A. — ANALYSE DE LA FORME DE LA RAIE (Fig. 12 A)

I	x	x ²	177-I	x ² (177-I) ⁻¹	176-I	x ² (176-I) ⁻¹
76	50	2500	101	25,0	100	25,0
80	47	2209	97	22,8	96	23,2
90	40	1600	87	18,4	86	18,6
100	34	1156	77	15,0	76	15,2
120	25,5	650	57	11,4	56	11,6
134	20	400	43	9,3	42	9,5
148	15	225	29	7,8	28	8,1
162	10	100	15	6,7	14	7,2
169	7	49	8	6,1	7	7,0

TABEAU II B. — ANALYSE DE LA FORME DE LA RAIE (Fig. 12 B)

I	x	x ²	I-41	x ² (I-41)
129	22	484	88	42.600
140	18	324	99	32.100
149	15	225	108	24.300
161	11	121	120	14.500

QUATRIEME PARTIE

CONCLUSION GÉNÉRALE

CHAPITRE IV

Conclusion Générale

§ 4.1. *Caractères fondamentaux de la méthode*

L'exemple des mesures décrites dans la 3^e partie met en évidence les caractères propres à la méthode que nous avons proposée dans la 2^e partie. Il apparaît en effet comme possible de procéder à une analyse fine des faibles modifications apportées au spectre de diffraction des rayons X par un champ extérieur. Le succès de la méthode provient de sa grande sensibilité.

L'appareil tel qu'il a été construit pour la mise au point de la technique de mesure et les premières applications, permet d'atteindre les variations relatives d'intensité à 10^{-1} près. Il n'en reste pas moins que dans le courant de notre étude nous n'avons rencontré aucune limite théorique à sa sensibilité et que dans l'avenir celle-ci pourra certainement être augmentée de quelques puissances de 10.

Le simple énoncé de ces chiffres évoque à lui seul une foule d'applications sur lesquelles nous allons revenir. Auparavant il faut remarquer que s'il n'y a aucune objection théorique à faire une mesure à 10^{-n} près il y a une objection pratique. Pour arriver à cette précision il faut en effet compter 10^{2n} impulsions au moins, ce qui exige des durées d'expériences qui peuvent être

prohibitives. Par exemple la mesure de la variation globale d'intensité de la raie 311 ($\eta = 20 \cdot 10^{-4} \pm 4 \cdot 10^{-4}$) a été faite en comptant $2,8 \cdot 10^6$ impulsions ce qui a exigé 14 jours de fonctionnement de l'appareil. De telles durées d'expériences sont possibles parce que la méthode n'a aucune exigence du point de vue stabilité, mais il faut en tenir compte quand on envisage les applications ultérieures.

§ 4.2. *Quelques applications possibles*

Elles sont diverses et différentes suivant que l'on fait agir la modulation sur la source de rayons X, sur le cristal ou sur le détecteur.

4.2.1. *Actions sur le détecteur.*

Dans cette catégorie se rangent les cas suivants : modification de la position ou de la largeur de la fente d'entrée du détecteur. Ces deux actions permettent de mesurer avec précision la pente de la courbe $I(\theta)$ ou de comparer les valeurs de I pour des valeurs θ_1 et θ_2 différentes.

4.2.2. *Actions sur le cristal.*

L'action d'un champ magnétique a été choisie comme exemple dans la 2^e partie. Nous n'y reviendrons pas.

L'action d'un champ électrique est également possible. Dans un cristal ionique une mesure des déplacements ioniques jointe à la connaissance de la constante diélectrique permettrait de mesurer les charges effectives portées par les différents ions. Dans un ferro-électrique ou un antiferro-électrique une mesure précise des variations de facteur de structure permettrait de déterminer quelles sont les variations de structure qui accompagnent la transition ferro-électrique (cf. annexe) (G 59).

L'action d'une contrainte mécanique peut être envisagée de plusieurs façons. Effectuée sur un cristal ionique piézo-électrique elle permettrait à encore de remonter jusqu'aux charges ioniques effectives. En comparant le paramètre cristallin en deux points voisins d'un matériau soumis à une contrainte il serait possible de se rendre compte de la répartition des efforts dans des régions où la détermination théorique est douteuse.

L'étude d'un cristal piézo-électrique en vibration avec une

fréquence de démodulation liée à la fréquence propre du cristal permettrait sans doute de déterminer les déformations qui accompagnent la vibration et d'élucider le problème de l'augmentation du pouvoir réflecteur d'un quartz vibrant (G 52).

L'action d'un champ magnétique au voisinage du point critique d'un cristal supraconducteur permettrait de savoir quelle est la modification de structure qui accompagne la transition vers l'état supraconducteur.

4.2.3. *Actions sur la source.*

L'utilisation de filtres de Ross (R 26) pour moduler le faisceau incident conduit à la réalisation d'un monochromateur dont l'avantage est de faire perdre très peu d'intensité.

Dans un ensemble de fluorescence si l'on applique un champ magnétique aux atomes émetteurs il en résulte par effet Zeeman une modification de la longueur d'onde des rayons X émis, d'où un déplacement des raies fournies par le cristal analyseur. La mesure de ce déplacement permettrait d'atteindre le facteur de Landé des électrons des couches internes.

Une étude analogue de l'effet Stark peut être envisagée.

§ 4.3. *Conclusion*

L'exemple traité et les possibilités rappelées dans le paragraphe précédent ne sont évidemment pas limitatifs. Ils montrent que la méthode que nous avons proposée et mise au point est une méthode puissante bien que d'emploi parfois fastidieux et qu'elle est susceptible de rendre possible des expériences délicates dans des domaines extrêmement variés de la physique.

ANNEXE 1

ÉVALUATION DE L'EFFET DU AU DÉPLACEMENT D'UNE RAIE

Une raie diffractée est caractérisée par son « profil » c'est-à-dire la fonction $I(\theta)$ telle que $I(\theta)d\theta$ représente l'intensité des rayons X diffractés dans la direction d'angle θ à $d\theta$ près. Si la raie subit un déplacement $\Delta\theta$, à l'exclusion de toute autre modification son profil devient $I(\theta-\Delta\theta)$. Si $\Delta\theta$ est petit on en déduit la variation relative d'intensité pour l'angle θ

$$\eta = \frac{\Delta I}{I} = \left(\frac{1}{I} \frac{dI}{d\theta} \right) \Delta\theta \quad (\text{A.I.1})$$

Dans la mesure où la largeur de la raie n'est due qu'à la durée de vie des états excités des atomes émetteurs, on sait que la répartition d'intensité en fonction de la fréquence du rayonnement est donnée par la formule (J 38, S 48) :

$$I(\nu) = I_0 \frac{\gamma}{2\pi} \frac{1}{(\nu-\nu_0)^2 + \frac{\gamma^2}{4}} \quad (\text{A.I.2})$$

où γ représente l'inverse de la durée de vie. L'angle de diffraction θ et la fréquence ν sont liés par la relation de Bragg

$$2a \sin \theta = \lambda = \frac{c}{\nu} \quad (\text{A.I.3})$$

où a représente la distance interreticulaire des plans diffractants, λ la longueur d'onde du rayonnement et c la vitesse de la lumière. On en déduit :

$$I(\theta) = I_0' \frac{1}{\left(\frac{1}{\sin \theta} - \frac{1}{\sin \theta_0} \right)^2 + \alpha^2}$$

ou encore, en admettant que θ diffère peu de l'angle de Bragg θ_0 défini par

$$2a \sin \theta_0 = \frac{c}{\nu_0}$$

$$I(\theta) = I_0' \sin^2 \theta_0 \operatorname{tg}^2 \theta_0 \frac{1}{(\theta - \theta_0)^2 + \varphi^2} \quad (\text{A.I.4})$$

où l'on a posé :

$$\varphi = \alpha \sin \theta_0 \operatorname{tg} \theta_0 = \frac{\gamma}{\nu_0} \operatorname{tg} \theta_0$$

La forme de $I(\theta)$ est donc, en première approximation, une forme de Lorentz. On montre que le maximum de $\frac{1}{I} \frac{dI}{d\theta}$ est atteint pour $\theta = \theta_0 \pm \varphi$ et vaut :

$$\left(\frac{1}{I} \frac{dI}{d\theta} \right)_{\max} = \frac{2}{\varphi} = \frac{2\nu_0}{\gamma} \cotg \theta_0 \quad (\text{A.I.5})$$

on obtiendra donc un effet maximum (pour $\Delta\theta$ donné) en se plaçant au voisinage de l'angle $\theta_0 \pm \varphi$.

Si le déplacement est dû à une variation du paramètre cristallin on a, au signe près, en différentiant la formule de Bragg :

$$\cotg \theta \Delta\theta = \frac{\Delta a}{a}$$

d'où

$$\eta_{\max} = \frac{2 \nu_0}{\gamma} \frac{\Delta a}{a} \quad (\text{A.I.6})$$

Cette formule montre que l'effet maximum est proportionnel à la durée de vie des états excités et inversement proportionnel à la longueur d'onde de la radiation utilisée. Quand ce n'est pas la largeur naturelle qui fixe la forme de la raie, mais la fonction d'appareil, $I(\theta)$ est formellement identique à A.I.4. Seule l'interprétation des paramètres change et il est légitime de prendre $\gamma \neq 2 \cdot 10^{16} \text{ s}^{-1}$, $\nu_0 = 4 \cdot 10^{18} \text{ s}^{-1}$ pour Mo $K\alpha$ d'où

$$\eta = 400 \frac{\Delta a}{a}$$

Cette valeur est atteinte en un point tel que $\theta = \theta_0 \pm \varphi$. Pour les autres points η peut être beaucoup plus faible. En particulier $\eta = 0$ pour $\theta = \theta_0$.

L'ordre de grandeur de $\eta_{\max}$ dans le cas de la compression d'une tige d'acier s'évalue comme suit : en première approximation la formule d'Young nous donne la variation relative du paramètre cristallin dans la direction de la compression :

$$\frac{\Delta a}{a} = \frac{1}{E} \frac{F}{s}$$

Si l'on choisit, par exemple, $F = 2 \text{ kg f}$ et $s = 1 \text{ mm}^2$, avec $E = 2 \cdot 10^4 \text{ kg f/mm}^2$ on obtient $\frac{\Delta a}{a} = 10^{-4}$ d'où $\eta_{\max} = 4 \cdot 10^{-2}$.

C'est l'ordre de grandeur des effets attendus qui a servi de base dans la discussion de la sensibilité de la méthode.

ANNEXE 2

ÉTUDE DES FLUCTUATIONS STATISTIQUES TECHNIQUE DU COMPTAGE

Dans cette annexe nous nous proposons de rappeler les résultats de calcul des probabilités relatifs à la loi des écarts, de les appliquer au cas particulier des expériences envisagées et d'en déduire les conséquences pratiques quant à la façon d'effectuer les mesures.

Si l'on fait une série de $2N$ épreuves donnant lieu chacune à l'une ou l'autre de deux alternatives, l'une de probabilité p l'autre de probabilité $q = 1 - p$, on s'attend à rencontrer $2Np$ résultats du 1^{er} type et $2Nq$ du second. En fait l'expérience donne des nombres différents N_1 et N_2 . On appelle « écart » la quantité

$$\Delta = N_1 - 2Np = 2Nq - N_2$$

ou encore,

$$\Delta = \frac{N_1 - N_2}{2} - N(p-q) \quad (\text{A.2. 1})$$

La théorie des probabilités nous apprend (BD 50) que l'on doit évaluer cet écart en prenant comme unité la quantité $\sqrt{4Npq}$. L'« écart réduit » λ , est alors défini par

$$\lambda = \frac{\Delta}{\sqrt{4Npq}} \quad (\text{A.2.2})$$

et la probabilité P_{12} pour que λ soit compris entre λ_1 et λ_2 est donnée par

$$P_{12} = \frac{1}{\sqrt{\pi}} \int_{\lambda_1}^{\lambda_2} e^{-x^2} dx \quad (\text{A.2.3})$$

On ramène ainsi le calcul de la probabilité d'un écart Δ à celui d'une seule intégrale

$$\Theta(\lambda) = \frac{2}{\sqrt{\pi}} \int_0^\lambda e^{-x^2} dx$$

Dans l'application envisagée il s'agit de compter des impulsions qui ont la probabilité p de passer sur la voie 1 et la probabilité q de passer sur la voie 2.

On pose

$$p = \frac{1}{2} + \frac{\eta}{4} \quad q = \frac{1}{2} - \frac{\eta}{4} \quad (\text{A.2.4})$$

Les nombres p et q sont proportionnels aux quantités n_1 et n_2 définies au § 2.2.3.2 et l'on vérifie facilement que c'est le même nombre η qui figure dans les formules II.2.1 et A.2.4.

Soit une expérience où l'on a enregistré $2N$ impulsions au total, savoir N_1 sur la voie 1 et N_2 sur la voie 2. On définit d'après (II.2.2) l'effet apparent η_a par

$$\eta_a = \frac{N_1 - N_2}{N} \quad (\text{II.2.2})$$

η_a est différent de η à cause des fluctuations et l'on se propose d'évaluer les probabilités pour que η diffère de η_a d'une valeur donnée.

Pour cela nous appliquons les résultats rappelés ci-dessus et calculons l'écart Δ : d'après (A.2.1)

$$\Delta = \frac{N_1 - N_2}{2} - \frac{N\eta}{2} = \frac{1}{2} (\eta_a - \eta)N$$

L'unité d'écart est

$$\sqrt{2 \cdot 2N \cdot \left(\frac{1}{4} - \frac{\eta^2}{16} \right)} \neq \sqrt{N}$$

dans la mesure où

$$\eta^2 \ll 4$$

L'écart réduit est donc

$$\lambda = \frac{\Delta}{\sqrt{N}} = \frac{1}{2} (\eta_a - \eta) \sqrt{N}$$

$$\text{d'où} \quad \eta = \eta_a - \frac{2\lambda}{\sqrt{N}} \quad (\text{A.2.5})$$

Dans cette formule λ est une variable aléatoire dont la loi de probabilité est définie par (A.2.3). En particulier l'intégrale $\theta(\lambda_0)$ représente la probabilité pour que λ_1 soit inférieur à λ_0 .

On calcule par exemple $\theta(0,5) = 0,52$. Cela signifie qu'il y a 52 chances sur 100 pour que η diffère de η_a d'une quantité moindre que $1/\sqrt{N}$. On calcule de même qu'il y a une chance sur 100 pour que η diffère de η_a d'une quantité supérieure à $3,6/\sqrt{N}$.

Ces résultats peuvent être traduits par un réseau de courbes (figure 10) donnant les variations de $2\lambda/\sqrt{N}$ en fonction de N pour différentes valeurs de $\theta(\lambda)$. On utilise ces courbes de la façon suivante : au cours d'une mesure on relève à intervalles réguliers les valeurs de N_1 et N_2 d'où l'on déduit η_a . En portant η_a en fonction de $N = \frac{N_1 - N_2}{2}$ on obtient une série de points répartis irrégulièrement mais tendant vers une limite égale à η quand N augmente (figure 9). Pour apprécier cette valeur limite il est commode de tracer le réseau de courbes précédent sur du papier transparent et d'essayer d'encadrer au mieux la courbe expérimentale (figure 9). Cette méthode permet de contrôler la régularité du déroulement de l'expérience et d'augmenter légèrement la précision de la mesure.

ANNEXE 3

CALCUL DU DÉPLACEMENT DES RAIES PAR MAGNÉTOSTRICTION

Dans un cristal cubique où la direction de magnétisation est définie par le vecteur unitaire $\vec{\alpha}$, la variation de longueur dans une direction définie par le vecteur unitaire $\vec{\beta}$ est donnée par

$$\frac{\Delta \ell}{\ell} = \frac{3}{2} \lambda_{100} [\Sigma \alpha_i^2 \beta_i^2 - \frac{1}{3}] + 3 \lambda_{111} (\Sigma_{i < j} \alpha_i \alpha_j \beta_i \beta_j) \quad (\text{III.1.1})$$

à condition que le cristal soit saturé et que les vecteurs $\vec{\alpha}$ et $\vec{\beta}$ soient rapportés aux axes cristallins.

Dans la diffraction des rayons X la longueur dont on mesure la variation est l'équidistance des plans réticulaires sur laquelle se fait la réflexion. Le vecteur $\vec{\beta}$ est donc perpendiculaire à ces plans (cf. fig. 6), ses composantes sont proportionnelles à h, k, l soient :

$$\beta_1 = \frac{h}{\sqrt{h^2 + k^2 + l^2}} \quad \text{etc.} \quad (\text{A.31})$$

On peut repérer le vecteur $\vec{\alpha}$ dans un système de 3 axes trirectangulaires dont l'un est parallèle à $\vec{\beta}$; soient $\vec{\beta}$, $\vec{\beta}'$, $\vec{\beta}''$, les vecteurs unitaires de ces axes. On a

$$\vec{\alpha} = \vec{\beta} \sin \varphi + \vec{\beta}' \cos \varphi \cos \psi + \vec{\beta}'' \cos \varphi \sin \psi$$

On doit calculer la somme $\Sigma \alpha_i^2 \beta_i^2$ et en prendre la valeur moyenne pour toutes les valeurs possibles de ψ .

Les termes rectangles de α_i^2 donnent une contribution nulle puisqu'ils sont proportionnels respectivement à $\sin \psi$, $\cos \psi$, $\sin \psi \cos \psi$ dont la valeur moyenne est nulle.

Il reste

$$\Sigma \alpha_i^2 \beta_i^2 = \sin^2 \varphi (\Sigma \beta_i^4) + \frac{1}{2} \cos^2 \varphi [\Sigma \beta_i^2 \beta_i'^2 + \Sigma \beta_i^2 \beta_i''^2]$$

Pour terminer le calcul on choisit les vecteurs $\vec{\beta}'$ et $\vec{\beta}''$ comme suit :

$$\left\{ \begin{array}{l} \beta_1' = \frac{\beta_2}{\sqrt{\beta_1^2 + \beta_2^2}} \\ \beta_2' = -\frac{\beta_1}{\sqrt{\beta_1^2 + \beta_2^2}} \\ \beta_3' = 0 \end{array} \right. \quad \left\{ \begin{array}{l} \beta_1'' = \frac{\beta_1 \beta_3}{\sqrt{\beta_1^2 + \beta_2^2}} \\ \beta_2'' = \frac{\beta_2 \beta_3}{\sqrt{\beta_1^2 + \beta_2^2}} \\ \beta_3'' = -\frac{\beta_1^2 + \beta_2^2}{\sqrt{\beta_1^2 + \beta_2^2}} \end{array} \right.$$

il vient

$$\Sigma_i \alpha_i^2 \beta_i^2 = \sin^2 \varphi (\Sigma \beta_i^4) + \cos^2 \varphi \frac{\beta_1^2 \beta_2^2 + \beta_3^2 [\beta_1^4 + \beta_2^4 + \beta_1^2 \beta_2^2]}{\beta_1^2 + \beta_2^2}$$

$$\Sigma_i \alpha_i^2 \beta_i^2 = (1-2S) \sin^2 \varphi + S \cos^2 \varphi$$

où l'on a posé $S = \Sigma \beta_i^2 \beta_j^2$

et tenu compte de la relation

$$\Sigma_i \beta_i^4 + 2 \Sigma_{i < j} \beta_i^2 \beta_j^2 = (\Sigma \beta_i^2)^2 = 1$$

Pour évaluer $\Sigma_{i < j} \alpha_i \alpha_j \beta_i \beta_j$

on peut procéder de la même façon, ou remarquer que

$$\Sigma_i \alpha_i^2 \beta_i^2 + 2 \Sigma_{i < j} \alpha_i \alpha_j \beta_i \beta_j = (\Sigma \alpha_i \beta_i)^2 = (\vec{\alpha} \cdot \vec{\beta})^2 = \sin^2 \varphi$$

d'où

$$\Sigma_{j < i} \alpha_i \alpha_j \beta_i \beta_j = \frac{S}{2} (2 - 3 \cos^2 \varphi)$$

En regroupant les résultats dans la formule III.1.1 il vient

$$\frac{\Delta \ell}{\ell} = \left\{ 3S (\lambda_{111} - \lambda_{100}) + \lambda_{100} \right\} \left(1 - \frac{3}{2} \cos^2 \varphi \right)$$

La variation relative du paramètre cristallin figurant dans la formule de Bragg ne dépend des indices (h, k, l) que par l'intermédiaire de S :

$$S = \frac{h^2 k^2 + k^2 l^2 + l^2 h^2}{(h^2 + k^2 + l^2)^2} = \frac{1}{2} - \frac{1}{2} \frac{h^4 + k^4 + l^4}{(h^2 + k^2 + l^2)^2}$$

On montre que $0 \leq S \leq \frac{1}{3}$; le premier facteur dans $\frac{\Delta \ell}{\ell}$ est donc compris entre λ_{111} et λ_{100} .

ANNEXE 4

APPLICATION AUX FERRO-ELECTRIQUES CAS DU TITANATE DE BARYUM

La méthode qui a été décrite ci-dessus a été imaginée à l'origine pour étudier les modifications de structure qui accompagnent le renversement des domaines ferro-électriques dans le titanate de baryum.

A la température ambiante le titanate de baryum cristallise dans une structure du type perovskite légèrement déformée. La maille est quadratique ($c/a = 1,02$), les atomes de baryum en occupent les sommets. Si la structure était parfaite, les atomes d'oxygène seraient au centre des faces et l'atome de titane au centre de la maille. En fait ces atomes sont déplacés par rapport à ces positions d'une quantité faible ($\sim 10^{-2} c$) que l'on cherche à évaluer.

Quand on fait agir un champ électrique suffisamment fort on peut inverser le sens de ces déplacements. Ceci correspond au renversement des domaines ferro-électriques.

La variation du module du facteur de structure entre les deux états ainsi définis est nulle, car on passe de l'un à l'autre état par symétrie par rapport à un plan. Il est donc impossible de faire apparaître une variation d'intensité diffractée en renversant d'un bloc la polarisation d'un cristal monodomaine.

Pour faire apparaître un « effet » il est nécessaire de maintenir une moitié du cristal dans un état de polarisation bien déterminée et de moduler l'état de l'autre moitié. Dans la mesure où la cohérence de phase est assurée sur une assez grande distance

on obtient alors des variations d'intensité diffractée d'où l'on devrait déduire les déplacements ioniques.

Cette expérience a été réalisée sur des monocristaux monodomaines. Elle a effectivement fonctionné et donné des résultats partiels (G 59). Malheureusement il s'est avéré que la modulation de la polarisation de la moitié du cristal avait pour effet systématique de faire apparaître des domaines parasites d'orientation différente de celle prévue. Il n'a pas été possible, malgré la diversité d'origine des cristaux essayés, de poursuivre l'expérience pendant des temps suffisants pour obtenir des résultats complets et exploitables. Le maintien dans un état de polarisation fixe d'une partie de cristal qui sert, en quelque sorte, de référence de phase pour les facteurs de structure, semble être une nécessité et un handicap sérieux dans l'étude des ferro-électriques. Remarquons qu'il n'en serait pas de même dans les antiferro-électriques où l'un des sous-réseaux servirait automatiquement de référence de phase.

BIBLIOGRAPHIE

- A 50. L. ALEXANDER, *J. A. P.*, 21 (1950), 126.
 A 54. L. ALEXANDER, *J. A. P.*, 25 (1954), 155.
 B 14. W. L. BRAGG, *Proc. Roy. Soc. Lond.*, A 89 (1914), 248 et 277.
 B 42. W. L. BRAGG, *Nature*, 149 (1942), 511.
 B 51. R. M. BOZORTH, *Ferromagnetism*. V. Nostrand, New-York, 1951.
 B 52. C. S. BARRET, *Structure of Metals*. Mc Graw Hill Book Co, New-York, 1952.
 B 55. R. M. BOZORTH, *Phys. Rev.*, 99 (1955), 1788.
 B 57. W. W. BEEMANN, P. KAESBERG, J. W. ANDEREGG, M. B. WEBB, *Hand. d. Phys.*, Bd XXXII (1957), S. 321.
 BB 13. W. H. BRAGG, W. L. BRAGG, *Proc. Roy. Soc. Lond.*, A 88 (1913), 428.
 BD 50. E. BOREL, R. DELTHEIL, *Probabilités et erreurs*. A. Colin, Paris, 1950.
 BW 52. R. M. BOZORTH, WALKER, *Phys. Rev.*, 88 (1952), 1209.
 C 50,1. J. M. COWLEY, *J. A. P.*, 21 (1950), 24, et *Phys. Rev.*, 77 (1950), 669.
 C 50,2. W. COCHRAN, *Acta Crystall.*, 3 (1950), 268.
 F 48. W. FELLER, *Studies and Essays* (chap. 28 s. 1). Interscience Publ. Inc., New-York, 1948.
 F 57. G. FOURNET, *Hand. der Phys.*, Bd XXXII Springer, 1957, s. 238.
 G 49. R. GLOCKER, *Material prüfung mit Röntgenstrahlen*, 3^e ed. Berlin, Spinger, 49.
 G 52. J. GUILLAUME, *C. R. Acad. Sci.*, 234 (1952), 1071.
 G 53. C. GUILLAUD, *Rev. Mod. Phys.*, 25 (1953), 64.
 G 56. A. GUINIER, *Théorie et technique de la radiocristallographie*. Dunod, Paris, 1956.
 G 57. A. GUINIER, *Handbuch der Phys.*, Bd XXXII s. 1-97.

- G 59. L. GODEFROY, *C. R. Acad. Sci.*, 248 (1959), 1686.
- J 38. F. W. JONES, *Proc. Roy. Soc., A* 166 (1938), 16.
- K 45. D. F. A. KLUCKENBERG, *Physica*, II (1945), 327.
- K 59. H. KILG et L. ALEXANDER, *A Ray Diffraction Procedures*, J. Wiley, New-York, 1959.
- L 13. M. LAUE, W. FRIEDRICH, P. KNIPPING, F. TANK, *Ann. Phys.*, 41 (1913), 971, 1011.
- M 60 K. M. MERZ, *J. A. P.*, 31 (1960), 147.
- MF 56. J. MILLMAN, H. TAUB, *Pulse and Digital Circuits*, Mc Graw-Hill, 1956.
- R 26. P. A. ROSS, *Phys. Rev.*, 28 (1926), 425.
- R 56. B. W. ROBERTS, G. H. VINEYARD, *J. A. P.*, 27 (1956), 203.
- S 46. C. G. SHULL, *Phys. Rev.*, 70 (1946), 679.
- S 48. A. R. STOKES, *Proc. Phys. Soc.*, 61 (1948), 382.
- V 52. R. VAUTIER, *C. R. Acad. Sci.*, 235 (1952), 337 et 417.
- VR 52. A. B. VAN RENNES, *Nucleonics*, July 1952, 20-27, August 1952, 22-28; September 1952, 32-37; October 1952, 50-56.
- W 48. W. A. WOOD et W. A. RACHINGER, *J. Inst. Met.*, 75 (1948), 571.
- W 50. L. WEIL, M. GALLAY et P. POINSSIN, *C. R. Acad. Sci.*, 231 (1950), 224.

TABLE DES MATIÈRES

PREMIÈRE PARTIE. --- INTRODUCTION

DEUXIÈME PARTIE. --- LES METHODES

Chap. 2.1. <i>La méthode classique</i>	11
2.1.1. Son principe et ses exigences	11
2.1.2. L'augmentation de l'intensité	12
2.1.3. L'augmentation de la stabilité	13
2.1.4. Discussion	14
Chap. 2.2. <i>La méthode de simple modulation</i>	15
2.2.1. Principe de la méthode	15
2.2.2. Principe de la réalisation	17
2.2.3. Discussion de la méthode	17
2.2.3.1. Le caractère aléatoire de l'émission des rayons X	17
2.2.3.2. Les imperfections de l'oscillateur local	18
2.2.3.3. Le bruit de fond	19

2.2.3.4. Les couplages avec l'oscillateur local	21
2.2.3.5. Le temps mort des échelles	21
2.2.3.6. Récapitulation	22
2.2.4. Mise en œuvre et performances de la méthode	23
2.2.4.1. Les différents organes de l'appareil	23
2.2.4.2. Contrôles et performances	27
2.2.4.3. Résumé	28
Chap. 2.3. <i>La méthode de double modulation</i>	28
2.3.1. Principe et discussion	28
2.3.2. Réalisation	30
2.3.3. Contrôles et performances	31
2.3.3.1. Contrôles et performances	31
2.3.3.2. Résumé	32
TROISIÈME PARTIE. — UN EXEMPLE D'APPLICATION	
Chap. 3.1. <i>La magnétostriction du ferrite de Cobalt</i>	33
3.1.1. Généralités	33
3.1.2. Calcul du déplacement des raies diffractées	36
Chap. 3.2. <i>Technique de la mesure</i>	39
3.2.1. Préparation des échantillons et génération du champ magnétique	39
3.2.2. Tracé des profils et mesure de la variation d'intensité de la raie	40
3.2.3. Nécessité d'une oscillation aléatoire de l'échantillon	44
3.2.4. Résultats	45

Chap. 3.3. <i>Discussion</i>	46
3.3.1. Analyse des résultats	46
3.3.2. Discussion du déplacement et de l'élargissement ..	49
3.3.3. Discussion de la variation d'intensité intégrée	50
3.3.4. Conclusion partielle	51

QUATRIÈME PARTIE. — CONCLUSION GENERALE

Chap. 4. <i>Conclusion générale</i>	53
4.1. Caractères fondamentaux de la méthode	53
4.2. Quelques applications possibles	54
4.2.1. Actions sur le détecteur	54
4.2.2. Actions sur le cristal	54
4.2.3. Actions sur la source	55
4.3. Conclusion	55

Annexe 1. — EVALUATION DE L'EFFET DU AU DÉPLACEMENT D'UNE RAIE	57
---	----

Annexe 2. -- ETUDE DES FLUCTUATIONS STATISTIQUES -- TECH- NIQUE DU COMPTAGE	60
--	----

Annexe 3. -- CALCUL DU DÉPLACEMENT DES RAIES PAR MAGNÉ- TOSTRICTION	63
--	----

Annexe 4. — APPLICATION AUX FERRO-ÉLECTRIQUES. CAS DU TITANATE DE BARYUM	66
---	----

DEUXIÈME THÈSE

PROPOSITIONS DONNÉES PAR LA FACULTE

**Amplification ultrasonique
dans les semi-conducteurs**

VU ET APPROUVÉ :

Paris, le 8 février 1963.

Le Doyen de la Faculté des Sciences,

Marc ZAMANSKY.

VU ET PERMIS D'IMPRIMER :

Le Recteur de l'Académie de Paris,

Jean ROCHE.

ACHEVE D'IMPRIMER
EN MARS 1963
SUR LES PRESSES DE J. PEYRONNET et C^{ie}
IMPRIMEURS-EDITEURS
8, RUE DE FURSTENBERG, PARIS-6^e
Ateliers de Joigny (Yonne)

C. O. L. 31.0086

Dépôt légal : 1^{er} trimestre 1963

